

## 高速炉燃料被覆管 (AISI Type-316 SS) の高温 ナトリウム中での腐食挙動(II)

材質および温度勾配の影響

1976年1月

動力炉・核燃料開発事業団  
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団 大洗工学センター

システム開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technology Management Section, O-arai Engineering Center, Power Reactor  
and Nuclear Fuel Development Corporation 4002, Narita O-arai-machi Higashi-  
Ibaraki-gun, Ibaraki, 311-14, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation)

正誤表

[PNC TN941 76-17 高速炉燃料被覆管 (AISI Type-316SS) の高温ナトリウム  
中の腐食挙動 (II), 材質および温度勾配の影響]

訂正箇所	誤	正
3頁, Table 1 の表題	Type - 316 Steel <sup>(2)</sup>	Type - 316 Stainless Steel
39頁, 上から5行目	Colebrook & White の式 <sup>(25)</sup>	Colebrook & White の(2)式 <sup>(26)</sup>
43頁, 下から3行目	Singer ら (BNL) <sup>(25)</sup>	Singer ら (BNL) <sup>(26)</sup>
45頁, 下から9行目	炭化物が	炭化物
46頁, 上から7行目	Photo. 9	Photo. 19
48頁, 上から10行目	考えられる。 <sup>(3)</sup>	考えられる。炭素移行の Driving <sup>(3)</sup>
76頁, 上から2行目	Hiltz (MSA) は 1200 °C	Hiltz (MSA) は 1200 °F <sup>(3)</sup>

(1976年1月)

## 高速炉燃料被覆管(AISI Type-316 SS)の 高温ナトリウム中での腐食挙動(II)

### 材質および温度勾配の影響

報告者 加納茂機\*

柚原俊一\*

清川優\*

中筋孝\*

厚母栄夫\*

期間 1973年8月15日～1976年1月20日

目的 JOYO用燃料被覆管の高温ナトリウム中での腐食挙動を明かにする。

#### 要旨

ナトリウム冷却高速炉の燃料被覆管(AISI Type 316 SS)のナトリウム腐食は種々の因子に依存すると考えられるが、ナトリウム純度に関しては前報で報告されている。<sup>(1)</sup>本試験ではJOYO用2次試作材(S-IIおよびK-II)およびMK-I炉心材(S-III, K-IIおよびC)の5種類の被覆管を5000時間ナトリウム中に浸漬し、材質および連続的温度変化(425～660°C)の影響をしらべた。その結果次のことが明かとなった。

- (1) 被覆管材質によりナトリウム腐食挙動が異なる。腐食量はS-III材が最も多く、650°Cでナトリウム接液面近傍にキャビティが生成するがS-II材では厚み全体に分布する。S-IIおよびS-III材表面にα相が生成するがC材では生成しない。
- (2) 連続的な温度上昇(熱流束下)でのナトリウム流方向の腐食量プロフィルは特異な傾向を示し熱交換器出口の等温部に試験部を設けた従来の試験と著しく異なる事が明らかとなった。
- (3) 連続的温度上昇での試験により脱炭及び脱窒開始温度がわかった。脱炭開始温度はヒートに、脱窒開始温度は初期電素含有量に依存する。
- (4) 短時間引張強さおよびかたさの浸漬温度依存性を室温で調べるとS-IIおよびK-II材は高いレベルを示しC材は低い。これはα相生成のためで、α相生成はナトリウム腐食の影響をうけると考えられる。
- (5) 被覆管のナトリウム腐食により高速炉にもたらされる問題点が文献調査により明らかになった。

\* 大洗工学センター ナトリウム技術部 ナトリウム技術開発室

January 1976

Corrosion Behavior of the Cladding Tube(AISI Type-316SS)  
for FBR in High Temperature Sodium (II)

Effect of Quality of Cladding Tube and Temperature  
Gradient in Sodium

Shigeki KANOH,\*  
Shun-ichi YUHARA,\*  
Masaru NAMEKAWA,\*  
Takashi NAKASUJI\* and  
Hideo ATSUMO\*

Abstract

In relation to the experimental estimation of corrosion behavior of AISI Type-316SS fuel cladding tube in high temperature flowing sodium, we clarified the relationship for sodium corrosion as a function of oxygen concentration in the preceding report.<sup>(1)</sup>

The present study has been carried out to establish the dependence of corrosion behavior on the quality of cladding tube and the temperature gradient in sodium. Two kinds of the second fabrication tubes for JOYO (S-II and K-II) and three kinds of tubes to be used for JOYO MK-I core (S-III, K-III and C) have been exposed in flowing sodium of 425°C through 660°C for 5000 hours.

The results obtained are as follows:

(1) The corrosion behavior in sodium is depend on the quality (difference of chemical compositions and refining) of cladding tube. S-III tube shows the greatest corrosion rate of all cladding tubes tested. The cavity which has been observed in the vicinity of the surface in contact with 650°C sodium distributes over the whole thickness of S-III tube. The α phase has been detected on the surface of S-II and S-III tubes but not on C tube.

(2) The profile of corrosion rate along sodium flow under the continuous rise of sodium temperature shows the unique shape. It is different from the test result at the isothermal region in the vicinity of the outlet of heat exchanger.

(3) The beginning temperatures of decarburization and denitritization have been obtained under the continuous rise of sodium temperature.

The beginning temperature of decarburization is depend on the heat

of cladding tube, while that of denitration is depend on the initial nitrogen content of cladding tube.

(4) The dependence of short-term tensile strength and hardness on the exposure temperature has been investigated at ambient temperature. S-III and K-III tubes show the high level (the higher the temperature rises, the greater the strength and the hardness become), while C tube shows the low level. It is due to the production of  $\sigma$  phase, which will be influenced by the sodium corrosion.

(5) We have been able to survey and clarify the problems that the sodium corrosion of fuel cladding tube result in to LMFBR.

---

\* Sodium Technology Section, Sodium Technology Division, Oarai Engineering Center

## 目 次

1. 緒 言	1
2. 試験方法	2
2.1 供試被覆管および試験片形状	2
2.2 試験装置	7
2.3 ナトリウム中試験条件	10
2.4 浸漬後試験方法	12
3. 試験結果	15
3.1 浸漬材の外観	15
3.2 浸漬表面の走査型電顕観察	15
3.3 重歛測定による腐食量	16
3.4 ナトリウム浸漬による表面あらさ変化	17
3.5 ナトリウム浸漬によるかたさ変化	21
3.6 浸漬表面のX線回折	23
3.7 浸漬表面の蛍光X線分析	25
3.8 浸漬表面の組成変化	26
3.9 浸漬材の金属組織	28
3.10 浸漬材の炭素、窒素および酸素分析	28
3.11 浸漬材の室温における機械的性質の変化	31
3.12 鋼着した試験片の引張試験	33
4. 考 察	35
4.1 被覆管表面層のナトリウム腐食（金属元素の溶出および沈着）	35
4.2 被覆管内部の組織変化	44
4.3 炭素および窒素移行	46
4.4 材料強度に及ぼすナトリウム腐食の影響	53
4.5 被覆管材質によるナトリウム腐食の違い	59
4.6 ナトリウム腐食に及ぼす熱流束の影響	62
5. 結 論	66
6. あとがき	67
7. 燃料被覆管の製作および設計上の問題点（ナトリウム環境効果の見地より）	68
8. 文 献	69
9. Appendix	75

## Table List

Table 1	Chemical Compositions of Type-316 Stainless Steel Cladding Tube (w/o) .....	3
Table 2	Properties of Type-316 Stainless Steel Cladding Tube .....	4
Table 3	Test Piece .....	6
Table 4	Test Conditions .....	10
Table 5	Conditions of Characteristic X-ray Analysis .....	13
Table 6	Surface Roughness of Cladding Tube Specimen .....	20
Table 7	Average Hardness .....	22
Table 8	Results of X-ray Fluorescence Analysis .....	25
Table 9	Adhesive Force of Self-Welded Specimens .....	34
Table 10	Estimates of Activated Corrosion Products in the Primary System of a 1000-MW(e) LMFBR after 30 Years of Operation (by C. A. Erdman, et al. <sup>(11)</sup> ) .....	37
Table 11	Fraction of Isotopes Deposited in Primary System Components (by C. A. Erdman, et al. <sup>(11)</sup> ) .....	38
Table 12	Composition of Fuel Cladding Materials (by H. U. Borgstedt, et al. <sup>(36)</sup> ) .....	52
Table 13	Boron Analysis (by G. P. Wozadlo, et al. <sup>(30)</sup> ) .....	58
Table 14	Comparison of Present Corrosion Rate Data with the Results of Other Investigations (by J. Hopenfeld <sup>(49)</sup> ) .....	65

## Figure List.

Fig. 1	Test Piece .....	5
Fig. 2	Dummy Test Piece .....	6
Fig. 3	Flow Sheet of Low-Purity Material Test Loop .....	7
Fig. 4	Flow Sheet of M-2 Loop .....	8
Fig. 5	Cross Section of Test Section (Heater) .....	8
Fig. 6	Arrangement of Test Piece .....	9
Fig. 7	Heater Element .....	9
Fig. 8	Progress of M-2 Loop Operation .....	11
Fig. 9	Distribution of Temperature at Test Piece .....	11
Fig. 10	Tensile Test Specimen of Self-Welded Cladding Tubes .....	14
Fig. 11	Weight Changes of S-II and S-III Cladding Tube Specimens .....	16
Fig. 12	Weight Changes of K-III Cladding Tube Specimens .....	17
Fig. 13	Average Weight Changes of Different Cladding Tube Specimens .....	18
Fig. 14	Surface Roughness of Cladding Tube Specimen as Received .....	19
Fig. 15	Surface Roughness of S-II Tube after Tested .....	19
Fig. 16	Surface Roughness of S-III Tube after Tested .....	19
Fig. 17	Surface Roughness of K-III Tube after Tested .....	19
Fig. 18	Surface Roughness of S-II Tube Determined by TALYSTEP .....	20
Fig. 19	Hardness vs. Distance from the Surface of Different Cladding Tubes at Different Temperatures .....	21
Fig. 20	Hardness vs. Temperature at the Surfaces of Cladding Tubes .....	22
Fig. 21	Ratio of after Tested Hardness to as Received Hardness .....	23
Fig. 22	Results of X-Ray Diffraction of Different Cladding Tube Surfaces .....	24

Fig. 23	Changes of Constituent Elements in the Neighbor of Cladding Tube Surfaces .....	25
Fig. 24	Electron Probe Microanalysis of Cladding Tube Surface (Ni, Cr, Fe) .....	26
Fig. 25	Electron Probe Microanalysis of Cladding Tube Surface (Fe, Cr, C) .....	26
Fig. 26	Electron Probe Microanalysis of Cladding Tube Surface (Cr, Mo, Na) .....	27
Fig. 27	Electron Probe Microanalysis of Cladding Tube Surface (Cr, Na, Si) .....	27
Fig. 28	Changes of Carbon, Nitrogen and Oxygen Content of Different Cladding Tubes at Different Temperatures. ....	29
Fig. 29	Initial Carbon Content vs. Beginning Temperature of Decarburization .....	30
Fig. 30	Initial Nitrogen Content vs. Beginning Temperature of Denitritization .....	31
Fig. 31	Stress-Strain Curves of Different Cladding Tubes after Ring Tensile Test .....	32
Fig. 32	Changes of Mechanical Properties due to Ring Tensile Test of Different Cladding Tubes .....	33
Fig. 33	Corrosion Rates & Temperature Distribution for Core & N.S.R. Specimens in Core Test Station No. 2 (by A.W. Thorley, et al. <sup>(8)</sup> ) .....	36
Fig. 34	Weight Gain and Temperature Profiles for I.H.X. Specimens (by A.W. Thorley, et al. <sup>(8)</sup> ) .....	36
Fig. 35	Relation between Re and $\sqrt{\lambda}$ .....	38
Fig. 36	Relation between Roughness and $\sqrt{\lambda}$ .....	39
Fig. 37	Movement of Alloy Constituents in a Test Loop (by P. Roy, et al. <sup>(20)</sup> ) .....	40
Fig. 38	Comparative Mass Transfer rates of Nickel-Base Alloys and Stainless Steels in Sodium-Operating Conditions: $\Delta T$ , 300°F; Flow, 2.5 gal/min; Test Time, 1000h (by J.H. Devan <sup>(21)</sup> ) .....	41
Fig. 39	Corrosion Rate of AISI 316 Cladding Tube .....	43
Fig. 40	Solubility of Iron in Sodium as a Function of Oxygen Activity (by R.M. Singer, et al. <sup>(26)</sup> ) .....	44

Fig. 41	Phase Shift Observation from fcc to bcc by X-Ray Diffraction (by S. Yuhara, et al.(1))	45
Fig. 42	Result of X-Ray Diffraction of Cladding Tube Surface (by A. Maruyama, et al.(4))	45
Fig. 43	Surface Carbon Distribution (MTL-3-14 and MTL-4-8) (by S.A. Shields, et al.(31))	47
Fig. 44	Relationship between the Axial Temperature Profile for the Fuel Pin and the Average Carbon Content of the 15-Mil Wall 20 % Cold-Worked Type 316 Stainless Steel Cladding after 1000-and 5000-hr Exposure to Sodium Containing 0.017 and 0.05 ppm Carbon (by R.B. Snyder, et al.(32))	48
Fig. 45	Carbon Concentration-Distance Profiles across the 20 % Cold-Worked Type 316 Stainless Steel Cladding Wall at 500, 600 and 700°C after 5000-hr Exposure to Sodium Containing 0.05 ppm Carbon (by R.B. Snyder, et al.(32))	49
Fig. 46	Effects of Exposure in Flowing Sodium on the Nitrogen Contents of Stainless Steels (by G.P. Wozadlo, et al.(30))	50
Fig. 47	Surface Nitrogen Distribution (MTL-3-14 and MTL-4-8) (by S.A. Shields, et al.(31))	50
Fig. 48	Clad Nitrogen Profiles (by A. Yates, et al.(35))	51
Fig. 49	Nitrogen Gradients in Stainless Steels after Sodium Exposure (by H.U. Borgstedt, et al.(36))	52
Fig. 50	Influence of Cold Work on N-Distribution in Steel I. 4988 (by H.U. Borgstedt, et al.(36))	52
Fig. 51	Correlation between Specimen Position and C/N Movement in AISI 304 Stainless Steel (by H.U. Borgstedt, et al.(36))	52
Fig. 52	The Carbon Activity-Concentration Relationship in Fe-Cr-8w/o Ni-C Alloys at 725°C, The Dashed Lines in This Figure Was Calculated Using Eq.[5] (by K. Natesan, et al.(40))	54
Fig. 53	The Carbon Activity-Concentration Relationship in S-III Cladding Tube	55
Fig. 54	Change of Carbon Activity due to Decarburization in S-III Cladding Tube	55
Fig. 55	Effect of N and B on Creep-Rupture Property of 18-8 Stainless Steel (650°C, 13.0 kg/mm <sup>2</sup> ) (by T. Yukitoshi, et al.(47))	58

Fig. 56	Boron Loss of Type I. 4970 Stainless Steel in Sodium (by H.U. Borgstedt, et al.(36)) .....	58
Fig. 57	Effect of P on Creep-Rupture Property of 16-13-Mo Steel (by T. Yukitoshi, et al.(47)) .....	59
Fig. 58	Effect of Cold Work on Corrosion Rate (by N. Aoki, et al.(3)) .....	60
Fig. 59	Corrosion Rates in Liquid Sodium (by H.U. Borgstedt, et al.(48)) .....	61
Fig. 60	Temperature Distribution of Radius Direction in the Vicinity of Sodium Exposed Cladding Tube .....	62
Fig. 61	Temperature Distribution of Sodium Flow Direction in the Vicinity of Sodium Exposed Cladding Tube .....	63
Fig. 62	Relation between Temperature Gradient and Weight Change .....	64
Fig. 63	Local Variation of Temperature and Weight Loss along Test Section (by J. Hopenfeld(49)) .....	64

## Photo. List

Photo. 1	External Appearance of Test Section before Tested .....	85
Photo. 2	External Appearance of Test Section after Tested .....	85
Photo. 3	External Appearance of Cladding Tube Specimens .....	87
Photo. 4	Stereographs of Cladding Tube Surfaces after Tested .....	88
Photo. 5	Scanning Electron Probe Micrographs of S-II Tube .....	89
Photo. 6	Scanning Electron Probe Micrographs of K-II .....	91
Photo. 7	Scanning Electron Probe Micrographs of S-III Tube .....	93
Photo. 8	Scanning Electron Probe Micrographs of K-III Tube .....	95
Photo. 9	Scanning Electron Probe Micrographs of C Tube .....	97
Photo. 10	Cross-Sectional Micrographs of Different Cladding Tubes as Received .....	99
Photo. 11	Cross-Sectional Micrographs of S-II Tube after Tested .....	101
Photo. 12	Cross-Sectional Micrographs of K-II Tube after Tested .....	102
Photo. 13	Cross-Sectional Micrographs of S-III Tube after Tested .....	103
Photo. 14	Cross-Sectional Micrographs of K-III Tube after Tested .....	104
Photo. 15	Cross-Sectional Micrographs of C Tube after Tested .....	105
Photo. 16	Tensile Test Specimens of Self-Welded Cladding Tube .....	106
Photo. 17	Self-Welded Surface after Tensile Test .....	107
Photo. 18	Cross-Sectional Micrographs of Self-Welded Surface .....	108

- Photo. 19 Type 316 Stainless Steel Exposed to  
Flowing Sodium at 704°C for the Times  
Shown (in Hours) (by D.W. Sandusky,  
et al.(28)) ..... 109
- Photo. 20 Nomarski Contrast of Stainless Steel  
Exposed to Flowing Sodium for 15726 H  
at 704°C (by D.W. Sandusky, et al.(28)) ..... 109

## 1. 緒 言

ナトリウム冷却高速炉の燃料被覆管には AISI タイプ 316・オーステナイトステンレス鋼製薄肉細管を使用することで燃料集合体の設計が進められており、高温ナトリウム中での腐食による被覆管の肉厚減少量および生成される表面変質層の形態に關し実験的に評価することが要請されている。

高温ナトリウム中での腐食はナトリウム純度、ナトリウム温度、材質等の腐食環境特有のパラメータに依存する。このうちナトリウム純度の依存性に関してはすでに一部は報告<sup>(1)</sup>されている。

温度依存性に関しては、ナトリウムループの各所に加熱器または冷却器を取付け、その出口に試験部を設ける方法で従来より試験されてきた。この場合試験部間では温度が違うが各試験部に取付けられた試験片は等温領域内にある。しかし実機の原子炉内では出入口で約 150 °C の温度差があり燃料被覆管ではナトリウム流にそって連続的に温度が上昇する。

そこで、炉心におけると同様に連続的な温度変化を試験片にあたえられる試験装置を設け、腐食の温度依存性をしらべた。

燃料被覆管は設計が進むにつれ仕様上に種々の改良が加えられてきたため試作時期の異なる被覆管に組成、金属組織等の差がみられる。また製作者独自の考えが製作仕様にもりこまれるため同時期の製作品でもメーカーにより組織、組成等に差がある。

そこで本試験では住友金属（株）の JOYO 用 2 次試作品と同実機材、神戸製鋼（株）の JOYO 用 2 次試作品と同実機材および米国カーペンタ社の JOYO 用実機材に関して腐食に対する材質の影響をしらべた。

本試験により高温ナトリウム中での腐食に対する温度および材質の影響に關し、基礎的知見が得られた。

また、燃料被覆管のナトリウム腐食によって高速炉にもたらされる問題点について動燃内および諸外国の報告をもとに検討した。

## 2. 試験方法

### 2.1 供試被覆管および試験片形状

供試被覆管の材質は AISI タイプ 316・オーステナイトステンレス鋼（製作仕様では、さらに Co, B および N の量を規制した）で住友金属（住金）、神鋼製鋼（神鋼）および米国カーペンタ社（JOYO 照射試験用に特に発注した）の製品である。供試材の組成を Table. 1 に示す。JOYO 用 2 次試作材と同実機材（JOYO 第 1 次炉心材）では成分規格値が Mn を除き全く同じであるが、特に実機材では Al, As, Cu, Nb+Ta および V を追加分析している。材料間の成分値を比較すると、C, Si, Mn, S, Ni, Cr, および Mo には著しい差はみられない。P については住金 2 次材とカーペンタ材が少ない。Co と B は神鋼の 2 種の材料が他より多い。N はカーペンタがそして V は住金が特に少ない。Al は神鋼が、Cu は住金が、Nb+Ta はカーペンタが特に多くなっている。

Table. 2 には供試材の諸性質を示す。各社で熱処理条件および加工度が多少異なっている。結晶粒度は住金 2 次試作材とカーペンタ材が他より粗くなっている。住金の実機材は 2 次試作材より微細化され神鋼材と同じ粒度となっている。引張強度はカーペンタ材が最も劣っている。住金材は神鋼材としらべ 2 次試作材の強度が多少低かったが実機材では改善されている。神鋼材は高温強度が実機材で上昇しているが逆に高温伸びが低下している。

被覆管製作仕様で特記すべき事項は次のとおりである。C の規格値は 0.04 ~ 0.08 % であるが特に 0.06 % の目標値をもうけている。また結晶粒度は ASTM No. 6.0 以上と規格されているが特に 7.0 ~ 9.0 という目標値をもうけている。素材は真空溶解を行ない、また溶体化処理は高純度水素を用いる光輝焼純により、炭化物の析出物を認めてはならないとしている。最終冷間加工は引抜き法により 8 ~ 15 % 行ない、その後機械的および化学的表面研磨を行なってはいけないとしている。

Fig. 1 に試験片の形状を示す。試験前後の重量変化を温度分布に対し細かく求めるため Fig. 1(A) のように被覆管を 50 mm に切断し、これを 36 個 Fig. 1(C) に示すサポートに順次とりつけ、被覆管ががたつかないように Fig. 1(B) に示す端栓をサポート両側にねじ込み固定した。Fig. 1(D) が組立て後の全景であり、供試被覆管の全長は 1800 mm である。ナトリウム入口側端栓にねじが切ってありこれによりループに固定され、出口側端栓は熱膨張をうける構造になっている。住金 2 次試作材 1 本、同実機材 4 本および神鋼実機材 5 本の合計 10 本を Fig. 1 のごとく製作し、ナトリウム中試験を行なった。

また Fig. 2 に示すダミー試験片 20 本を製作した。外形寸法は Fig. 1 と全く同じにしてあり、異なる点は被覆管が短かく切断されず 1800 mm 1 本ものであることおよび実機と同様に端栓とヘリアーリク溶接されていることである。住金 2 次試作材 2 本、同実機材 7 本、神鋼 2 次試作材 2 本、同実機材 7 本およびカーペンタ材 2 本が製作された。

**Table 1** Chemical Compositions of Type-316 Steel Cladding Tube (w/o)  
 Second Trial Fabrication Tube for JOYO

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Co	B	N	Al	As	Cu	Nb+Ta	V	Fe	
Spec.	0.04	≤0.75	≤2.00	≤0.03	≤0.03	11.00	16.00	2.00	≤0.10	≤0.001	≤0.035							
SUMITOMO METAL (S-II)	Ladle Analysis	0.06	0.58	1.52	0.003	0.017	13.14	16.60	2.52	0.02	0.0005	0.0262						Bal.
	Check Analysis	0.06	0.58	1.57	0.003	0.013	13.25	15.80	2.57	0.02	0.0003	0.0262						Bal.
	Check Analysis	0.06	0.58	1.57	0.003	0.014	13.25	16.77	2.57	0.02	0.0003	0.0260						Bal.
KOBE STEEL (K-II)	Ladle Analysis	0.072	0.58	1.67	0.014	0.013	12.47	17.13	2.54	0.04								Bal.
	Check Analysis	0.066	0.62	1.65	0.017	0.013	12.43	16.70	2.48	0.043	0.001	0.034	0.008	0.020				Bal.
	Check Analysis	0.067	0.62	1.69	0.020	0.015	12.40	16.72	2.45	0.043	0.001	0.035	0.008	0.020				Bal.

Tube to Be Used for JOYO

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Co	B	N	Al	As	Cu	Nb+Ta	V	Fe	
Spec.	0.04	≤0.75	1.50	≤0.03	≤0.03	11.00	16.00	2.00	≤0.10	≤0.001	≤0.035							
SUMITOMO METAL (S-III)	Ladle Analysis	0.07	0.50	1.71	0.020	0.009	13.05	16.90	2.30	0.01	0.0002	0.0335						Bal.
	Check Analysis	0.07	0.50	1.75	0.018	0.008	13.11	16.80	2.37	0.01	0.0002	0.0281	0.0010	0.0020	0.0030		Bal.	
	Check Analysis	0.07	0.50	1.74	0.019	0.007	13.14	16.80	2.38	0.01	0.0002	0.0280	0.0020	0.0020	0.0030		Bal.	
KOBE STEEL (K-III)	Ladle Analysis	0.05	0.55	1.62	0.015	0.008	13.22	16.21	2.40	0.04	0.0009	0.0240						Bal.
	Check Analysis	0.05	0.52	1.51	0.017	0.009	13.08	16.28	2.38	0.04	0.0014	0.0235	0.0030	0.0020	0.0180		Bal.	
	Check Analysis	0.05	0.53	1.52	0.018	0.009	12.94	16.26	2.40	0.04	0.0012	0.0242	0.0020	0.0020	0.0200		Bal.	
CARPENTER (C)	Ladle Analysis	0.06	0.50	1.70	0.004	0.003	13.69	17.35	2.29	0.01	0.0009	0.004	0.005	0.01	0.02	0.02		Bal.
	Check Analysis	0.05	0.55	1.65	0.002	0.010	13.73	17.41	2.48	0.01	0.0005	0.005	0.005	0.01	0.02	0.01		Bal.
	Check Analysis	0.05	0.54	1.71	0.002	0.016	13.65	17.05	2.44	0.01	0.0006	0.005	0.005	0.01	0.02	0.01		Bal.

Table 2 Properties of Type-316 Stainless Steel Cladding Tube

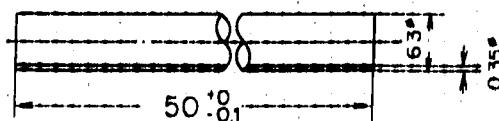
Tube to Be Used for JOYO 6.3<sup>‡</sup>(0.0) × 0.35<sup>t</sup> × 1825<sup>‡</sup>

	Tensile at R.T.				Tensile at 650°C						
	Solution Heat Treatment, °C x Hr	Cold Work %	Hardness, HV (100g)	Grain Size, ASTM No.	UTS, kg/mm <sup>2</sup>	YS, 0.2% offset kg/mm <sup>2</sup>	Elongation, %	UTS, kg/mm <sup>2</sup>	YS, 0.2% offset kg/mm <sup>2</sup>	Elongation, %	Surface Roughness, S
Spec.	8~15	≤290	≥6.0		≥60	≥40	≥25	≥30	≥20	≥20	≥1.5
SUMITOMO METAL (S-III)	980×0.4	12	261, 267	9.0, 9.0, 9.0, 9.0	79.7, 79.7	65.0,	66.2	29, 27	44.8, 44.8	37.6,	25, 25
KOBE STEEL(K-III)	1010×0.2	10	231, 235	9.0, 9.0, 9.0, 9.0	75.9, 76.7	62.5,	64.2	36, 36	47.9, 48.6	42.1,	20, 19
CARPENTER (C)	1050×0.1	13	254, 256	8.0, 7.5, 7.5, 7.5	70.0, 69.3	54.0,	53.4	33, 30	39.8, 39.8	32.5,	23, 22

Second Trial Fabrication Tube for JOYO 6.3<sup>‡</sup>(0.0) × 0.35<sup>t</sup> × 2000<sup>‡</sup>

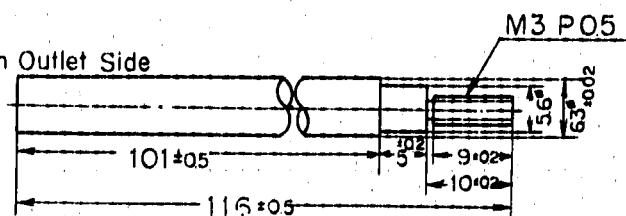
	Tensile at R.T.				Tensile at 650°C				Surface Roughness, S		
	Cold Works, %	Hardness, HV	Grain Size, ASTM No.	UTS, kg/mm <sup>2</sup>	YS, 0.2% offset kg/mm <sup>2</sup>	Elongation, %	UTS, kg/mm <sup>2</sup>	YS, 0.2% offset kg/mm <sup>2</sup>	Elongation, %	Inner	Outer
Spec.	8~15	≥6.0		≥60	≥40	≥25	≥30	≥20	≥15	≥3.0	≥3.0
SUMITOMO METAL (S-II)	260, 274	7.2, 7.1	70.9, 70.6	57.5, 58.6	31, 32	42.7, 43.7	34.1,	33.9	24, 24	0.8, 0.8	0.8, 0.8
KOBE STEEL(K-II)	268, 263	9.0, 9.0	76.6, 77.5	62.9, 63.1	34, 33	44.3, 45.2	38.0,	39.2	27, 26	3.6, 0.5	2.0, 1.8

(A) Clad

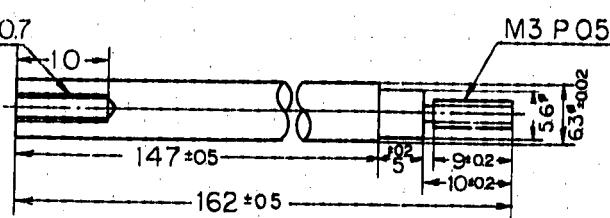


(B) Plug

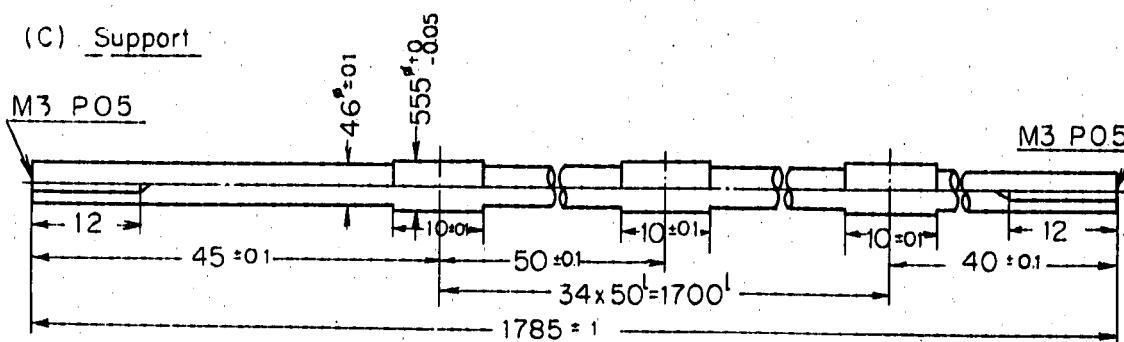
Plug of Sodium Outlet Side



M4 P=0.7  
Plug of Sodium  
Inlet Side



(C) Support



(D) Assembly

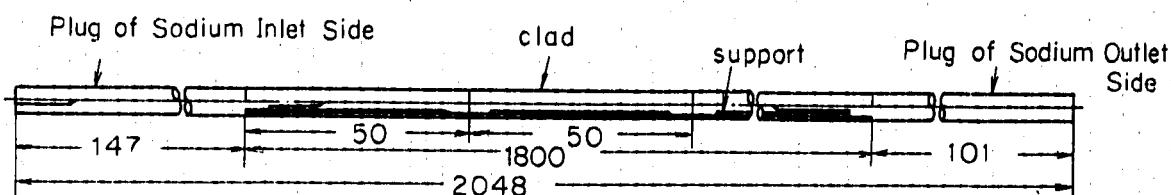


Fig. 1 Test Piece

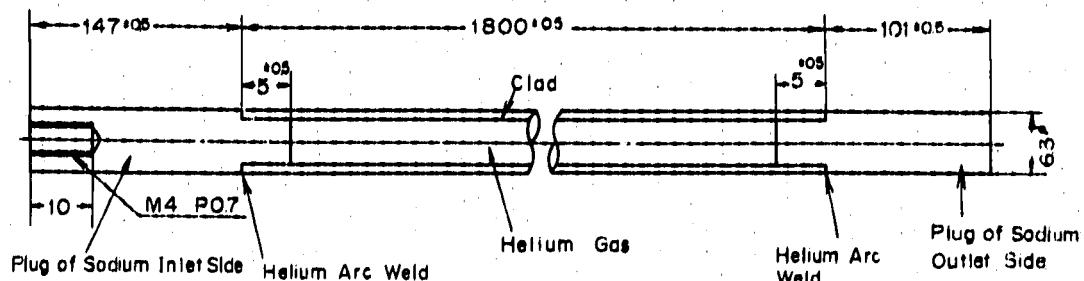


Fig. 2 Dummy Test Piece

Table. 3 は試験片の一覧である。質量移行試験用の 50mm 被覆管には各々刻印をつけた。受入れ被覆管の一方より 50 mm 毎に切断していき、各被覆管にはアルファベット一文字と数字を 1 から順につけた（若い数字が低温側）。そのうち表面にキズがあるものは除外したので所々欠番となっている。素管 1 本より 50 mm × 36 本を採取できないので不足分は同ロットの被覆管で補なった。したがって 1 体の質量移行試験片は 2 種のアルファベット文字で刻印された被覆管からなっている。

なお、後述の試験結果および考察の中では、住金材のうち 2 次試作品を S-II, 同実機材を S-III, 神鋼材のうち 2 次試作品を K-II, 同実機材を K-III, そしてカーペンター材を C と記すことにする。

Table 3 Test Piece

## Test Piece for Mass Transfer

	Manufacturer	Mark	50 mm Cladding Tube No.	Cladding Tube No.	
Second Trial Fabrication Tube for JNYN	SUMITOMO METAL	J	G1~G12, J14~J37	S3797, S3498	S-II
Tube to Be Used for JOYO	KOBE STEEL	K	K1~K6, K8~K18, K20~K35, P1~P3	K2711, K2717	
		L	L1~L16, L18~L34, P4~P6	K2713, K2717	
		M	M1~M33, P7~P9	K2714, K2717	K-III
		N	N1~N19, N21~N27, N29~N35, P10~P12	K2715, K2717	
		O	O1~O30, O32~O34, P13~P15	K2716, K2717	
	SUMITOMO METAL	Q	Q2~Q34, V17~V19	S0504, S0509	
		R	R2~R34, V20~V22	S0505, S0509	S-III
		S	S1~S33, V23~V25	S0506, S0509	
		T	T1~T33, V26~V28	S0507, S0509	

## Dummy Test Piece

	Manufacturer	Mark	Cladding Tube No.		
Second Trial Fabrication Tube for JOYO	SUMITOMO METAL	S*	S3775, S3788		S-II
Tube to Be Used for JOYO	KOBE STEEL	K*	K3203, K3238		K-II
	SUMITOMO METAL	S*	S0535, S0536, S0537, S0539, S0540, S0541, S0542		S-III
	KOBE STEEL	K*	K2770, K2803, K2812, K2784, K2788, K2800, K2805		K-III
	CARPENTER	R*	R1169, R1138		C

## 2.2 試験装置

試験装置は低純度材料試験ループに付設した燃料被覆管質量移行試験ドータループM-2であり、供試材はM-2の加熱器内に取付けられた。

Fig. 3 に示すように低純度材料試験ループは純化系ライン（コールドトラップライン、プラグ計ラインおよび酸素計ライン）、クリープ、フレッティングおよび質量移行試験部などで構成されている。

Fig. 4 に示すM-2 ループは電磁ポンプ、電磁流量計、冷却器および試験片挿入部を内蔵した加熱器より構成される。このループの最高試験温度は 660 °C、最高ナトリウム流速は 5 l/min でナトリウムが接触する機器配管類はすべて SUS 316 材で構成されているモノメタリックループである。一方マザーループは SUS 304 からなっている。

Fig. 5 は加熱器のナトリウム流方向の断面である。加熱は外巻きヒータ方式であり、加熱器はヒータが取付けられるだけの表面積が必要であるため直径が大きくなっている。そこでナトリウム流路断面積を小さくするため内筒管を設け、供試被覆管は加熱器胴と内筒管の間に、双方から等距離 3.9 mm の位置に取付けられた。被覆管よりナトリウム流の上流側へ 70 mm の位置から、被覆管よりナトリウム流の下流側へ 25 mm の位置まで全長 1895 mm にわたり流路形状が一定している。内筒管はナトリウムが入る構造で下部に 20 φ、上部平板に 0.5 φ のドレン穴がある。試験片は下部端栓（ナトリウム入口側、低温側）が内筒管（加熱器の上部平板に固定されている）に固定され、上

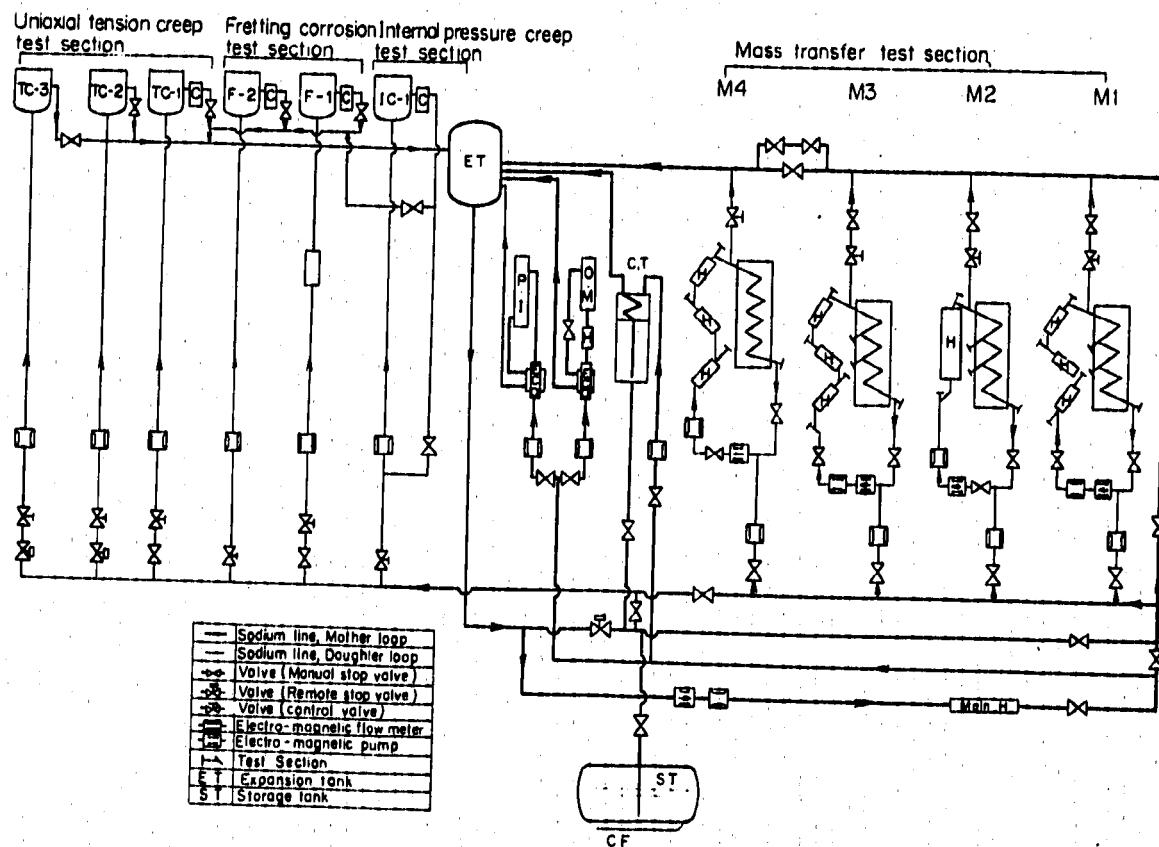


Fig. 3 Flow Sheet of Low-Purity Material Test Loop

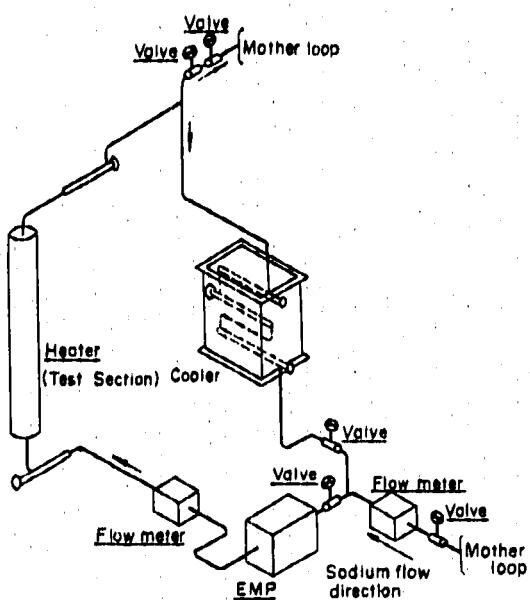


Fig. 4 Flow Sheet of M-2 Loop

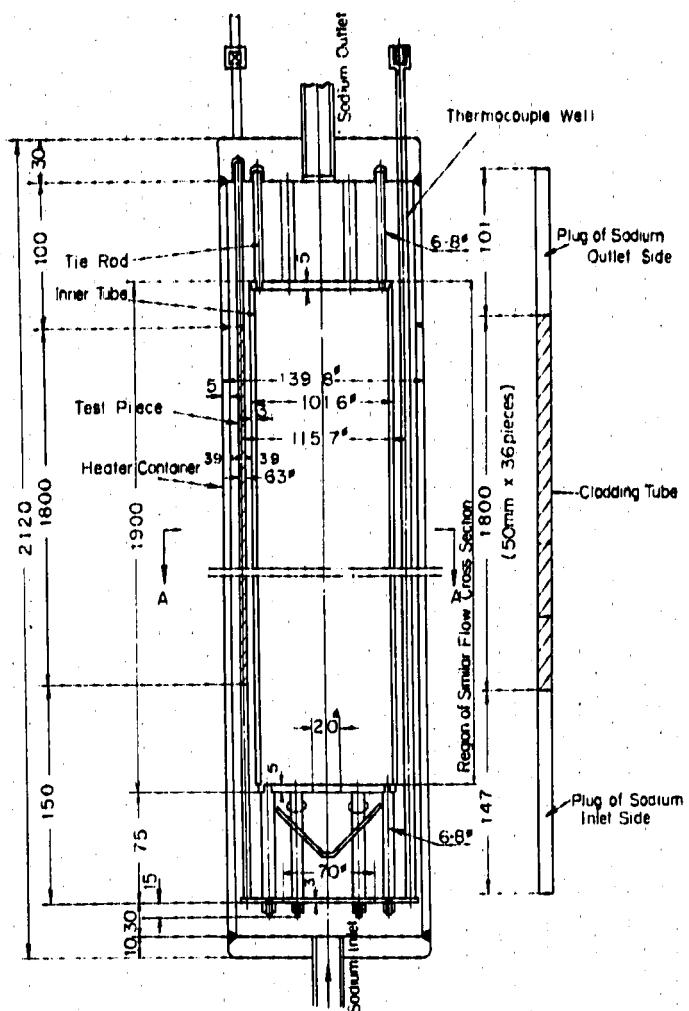
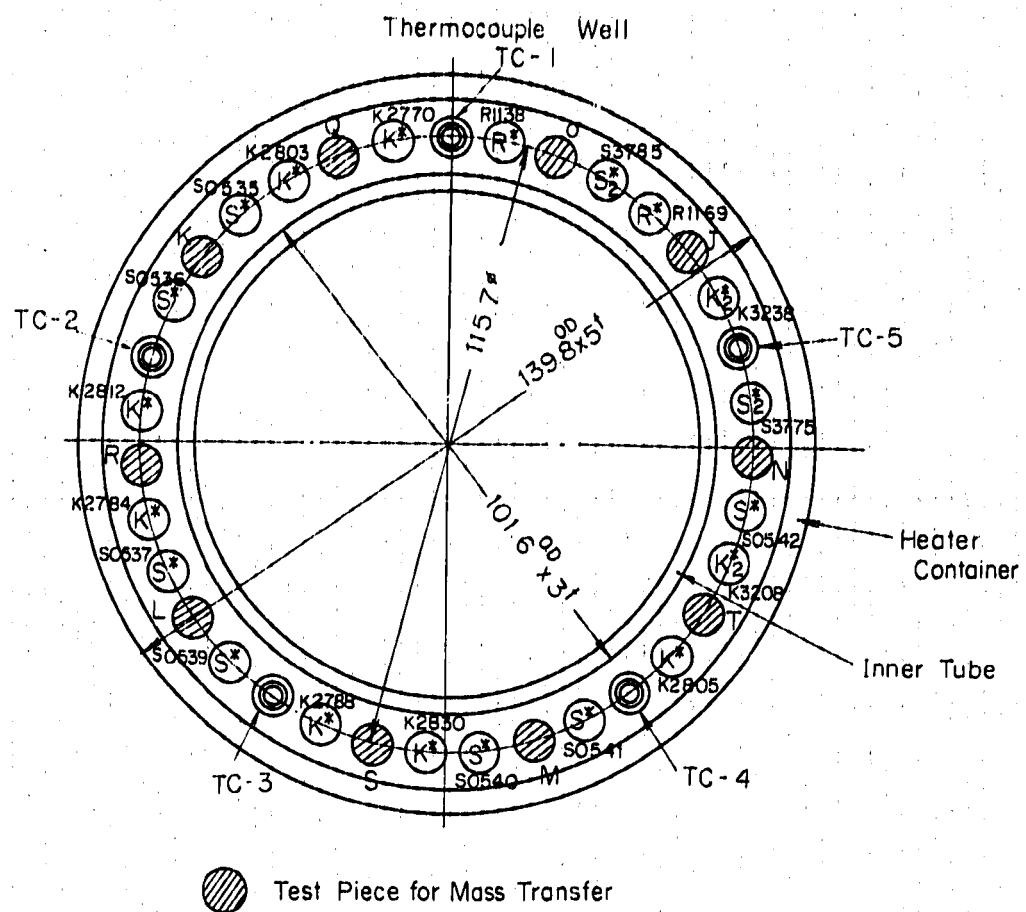


Fig. 5 Cross Section of Test Section (Heater)

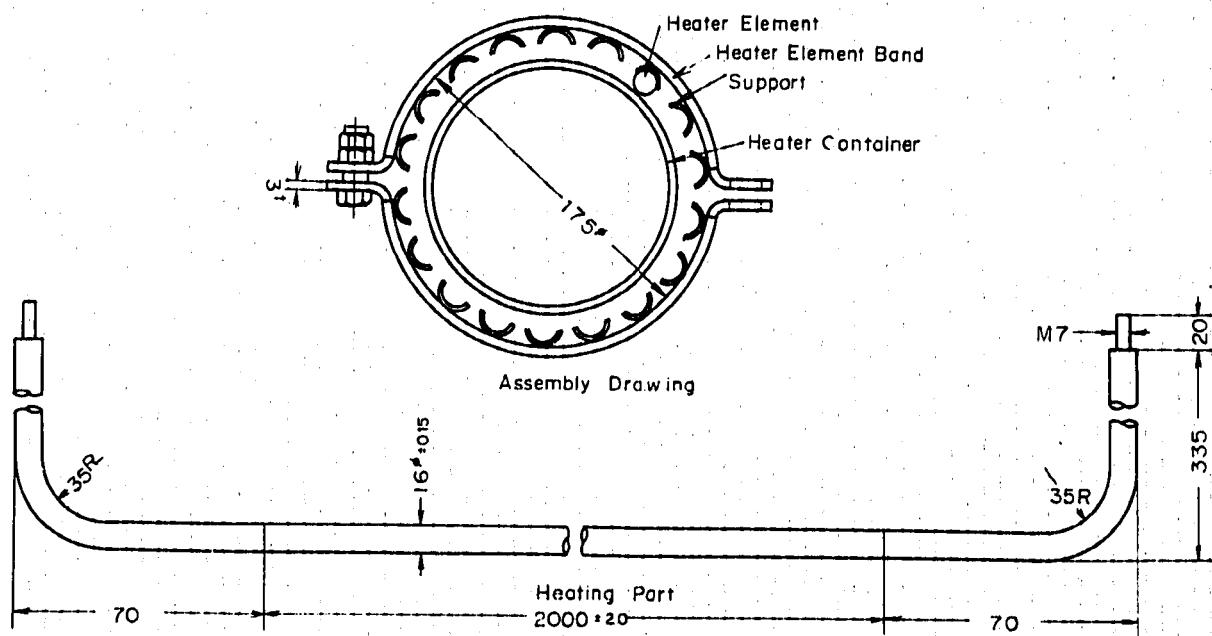
部は加熱器の上部平板にあけた穴にさしこまれ熱変形に対し自由にスライドできる構造となっている。

Fig. 6 には Fig. 5 に印した A-A 矢視図を示す。これは一定流路断面部分における供試被覆管の配列を示す。この中の試験片の略号は Table 3 のものと一致する。この同心円上配列のうち 5 本は熱電対ウエル (TC-1 ~ TC-5) であり、ナトリウムの流动条件を一定とするため被覆管と同じ外径 6.3 φとした。熱電対先端は下部端栓のビス取付端から 167, 517, 867, 1217 および 1567mm の位置にある。この 5 本の熱電対と加熱器出口に取付けられた熱電対により各地点における平均温度を求めた。なお加熱器の半径方向 (ナトリウム流と直交する) の温度分布測定は行なわなかった。熱電対スリーブには熱電対先端部と同じ外径の丸棒を溶接接合し、この丸棒を試験片と同じように内筒管に固定した。見かけ上、熱電対ウエルと試験片は全く同じ外形を有している。

Fig. 7 に示すヒータエレメント 18 本が加熱器胴のまわりに等間隔に取付けられた。エレメント



**Fig. 6** Arrangement of Test Piece



**Fig. 7** Heater Element

1本当たり  $1.8 \text{ kW}$ , 有効発熱部  $2000 \pm 20 \text{ mm}$ , シース外径  $16 \phi$  であり, 端子部は加熱器胴に直角に曲げ, 保溫層の外に出した。

### 2.3 ナトリウム中試験条件

ナトリウム中試験はマザーループから精製したナトリウムを常時, ドータループに供給しつつ行なった。

**Table 4** に本試験のナトリウム中諸条件を示す。ナトリウム流量は当初  $5 \text{ l/min}$  とする予定であったが電磁ポンプの性能に制限され平均  $2.27 \text{ l/min}$  であった。試験片は連続的に温度が変化しているのでレイノルズ数も連続的に変化している (min. 241 ~ max. 526)。JOYOの炉心のレイノルズ数が約 50,000 であるのとくらべ 2 极も低くなっているが, 温度分布および流動条件の両方を JOYO の条件にあわせることは, 電磁ポンプおよび外巻式電気ヒータ方式では不可能であるので, 本試験では流動条件を犠牲にし温度分布を JOYO にあわせることとした。しかも連続的な温度分布がある状態での腐食挙動をより顕著に得るために JOYO での出入口温度差約  $150^\circ\text{C}$  より大きい温度差  $235^\circ\text{C}$  を与えた。試験時間はナトリウム温度と流量の双方が安定している時間の合計と考えると, 本試験は 4728 時間であった。

**Fig. 8** に M-2 ループの運転経過をループ内のナトリウム流量および加熱器出口配管部でのナトリウム温度の変化により示した。運転途中でループ改修のため一度ナトリウムドレンしている。ナトリウムチャージ後, ナトリウム温度および流量を安定させるのに 10 日以上を要しているがこれは低純度ループに付設されている他のドータループへのナトリウムチャージ操作の影響をうけたためである。第 2 回チャージ後は M-2 ループ内の圧力損失が増大しナトリウム流量を低くせざるを得なかつた。第 1 チャージ後と第 2 チャージ後ではナトリウム温度は同じであるがナトリウム流量が約  $0.8 \text{ l/min}$  も異なっているのがわかる。

**Fig. 9** には試験片における温度分布を示す。加熱器内の 5 本の熱電対によって測定した平均値が示されており, 温度分布は試験片軸方向に対し直線状であった。加熱器の出口では温度計測を行な

Table 4 Test Conditions

Sectional Area of Sodium Flow Path ( $\text{mm}^2$ )	4032
Wetted Perimeter (mm)	1419
Equivalent Diameter (mm)	11.4
Sodium Flow Rate ( $\text{l/min}$ )	min. 1.64, max. 2.68, ave. 2.27
Sodium Velocity ( $\text{mm/sec}$ )	min. 6.8, max. 11.1, ave. 9.4
Re Number	min. 241 max. 394 ave. 334 at $425^\circ\text{C}$ min. 280 max. 457 ave. 387 at $543^\circ\text{C}$ min. 322 max. 526 ave. 445 at $660^\circ\text{C}$
Temperature of Test Piece ( $^\circ\text{C}$ )	425 ~ 660, ave. 543
Cold Trap Temperature ( $^\circ\text{C}$ )	min. 200
Total Test Time (hrs.)	4728

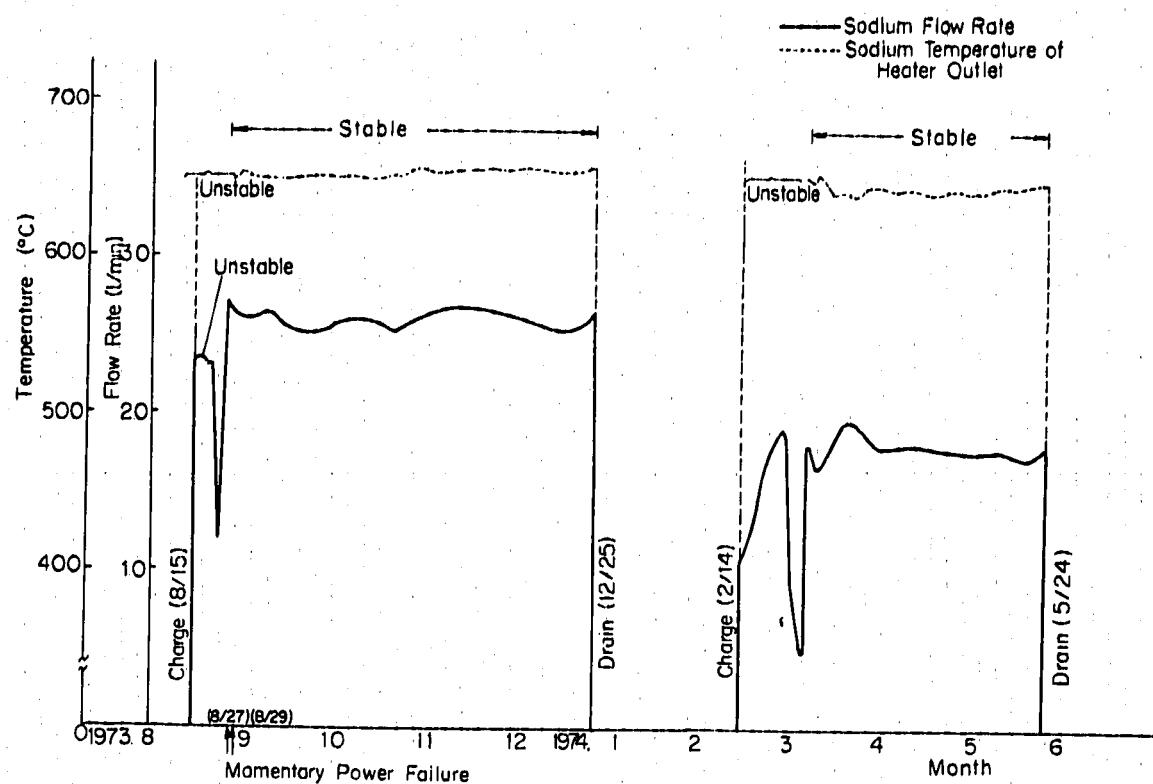


Fig. 8 Progress of M-2 Loop Operation

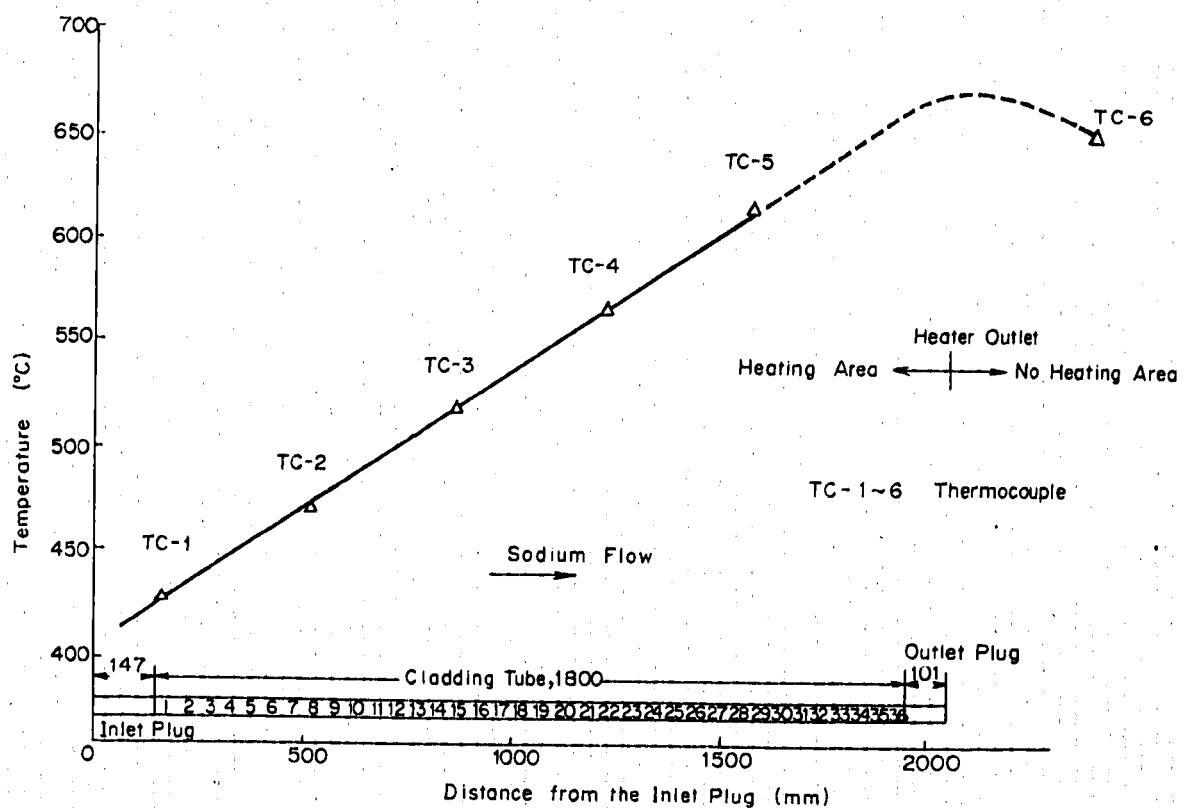


Fig. 9 Distribution of Temperature at Test Piece

わなかつたが、この部分も温度計測部と同じように加熱したので点線のよう直線状の温度分布を示し、また加熱器出口配管部は加熱されなかつたので温度が降下したと予想される。加熱器出口での計測点 (T C - 6) は Fig. 8 に示した温度の平均値である。被覆管では、ナトリウム流にそつて 425 °C から 660 °C まで温度が直線状に上昇したものと假定し、後述の解析を行なう。

## 2.4 浸漬後試験方法

種々の温度のナトリウム中に 4728 時間浸漬した 5 種類の被覆管について以下に述べる試験を行なつた。なおナトリウム浸漬試験片は最終的にエチルアルコール中で超音波洗浄を行なつた後、熱風乾燥させ真空中に保存した。

### (1) 浸漬表面の実体顕微鏡および走査型電子顕微鏡観察

使用した実体顕微鏡は OL YMPUS 社の三筒式実体顕微鏡 TYPE X-Tr である。走査型電顕は HITACHI 社の分解能 200 Å の HSM-2 形で、被覆管の種類および浸漬温度による表面状態の差に注目しながら観察はすべて受け入れ時の状態もしくは浸漬したままの状態で行なつた。撮影条件は、加速電圧 25 kV、傾斜角度 45 ~ 30°、露光時間 100 sec、撮影倍率は 1000 倍または 3000 倍であった。

### (2) ナトリウム浸漬前後の重量測定

ナトリウム浸漬による腐食量（溶出および沈着）を試験片の浸漬前後の重量変化から求めため、METTLER 社の H-20 形直示天秤により重量測定を行なつた。特に被覆管の種類および浸漬温度の効果に注目した。最大測定可能重軸は 160 g、最小読取値は 1/100 mg であった。

### (3) 表面あらさ

ナトリウム浸漬前後の表面あらさを求めるため、MITSUTOYO 社の触針式の超あらさ検査機 A B - 2 により、あらさ試験を行なつた。このあらさ試験機は触針先端の上下方向の変位を歪みゲージにより検出するタイプである。触針先端はダイヤモンド製で、先端角度 70°、半径 5 μm ある。従つて、半径 5 μm 以下のくぼみに対しては、実際の深さよりも、やゝ浅い値を示すことになる。あらさ試験は、被覆管試験片の表面に沿つて、管長手方向に、触針をトレースさせる方法で行なつた。一部試験片については英國 RANK TAYLOR HOBSON 社の TALYSTEP を使用した。この装置の触針先端半径は 0.1 μm と小さい。

### (4) 断面のかたさ分布測定

ナトリウム浸漬前後の被覆管厚み方向（間隔 50 μm）のかたさ分布変化を、被覆管の種類および浸漬温度による差に注目して AKASHI 製微小かたさ計 MVK-D 形で求めた。試験荷重は 100 g で、荷重負荷時間は 30 sec であった。

### (5) 浸漬表面の蛍光 X 線分析

ナトリウム浸漬温度による被覆管表面層の構成元素 (Fe, Cr, Ni, Mo, Mn, Co, および Si) の変化を調べるために、RIGAKUDENKI 製の GEIGER FLEX SPECTROMETER GF

-S形により蛍光X線分析 ( $K\alpha$ 線) を行なった。印加電圧50KV, 印加電流30mAおよびTime Const. 1 sec である。分光結晶および計数管は、Siの分析にはE.D.D.T (C<sub>6</sub>H<sub>14</sub>NaO<sub>6</sub>:Ethylenediamine d-tartrate) オよびPRガスフロー形プロポーションカウンタ (印加電圧2000V) を、Si以外の分析にはLiF オよびシンチレーションカウンタ (印加電圧840V) を使用した。分析試料は20mmの長さに水中で輪切りにした被覆管を万力により平板状に圧縮して作った。各元素について1回あたり80sec間の計測を15回づつ行ないその平均値を求めた。半定量的な分析を目的としたので標準試料による検量線は作らなかった。

#### (6) 浸漬表面のX線回折

ナトリウム浸漬による被覆管表面層の結晶構造の変化を調べるためにX線回折試験を行なった。特に被覆管の種類および浸漬温度の効果に注目した。使用した装置はRIKADENK1社の自記X線回折装置であり、X線発生装置4053A3、回折用ゴニオメータSG-8、計数記録装置5055 A オよびNaIシンチレータで構成されている。試験片は蛍光X線分析と同様の方法で作成した。測定条件はTarget X線CuK $\alpha$ 、印加電圧35KV、印加電流15mA、Scanning Speed 2°/min、Full Scale  $1 \times 10^3$  cps オよびTime Constant 2 sec であった。

#### (7) 浸漬表面のXMA

ナトリウム浸漬による被覆管表面層の構成元素の濃度変化を調べるために、XMA線分析を行なった。使用した装置はHITACHI製XMA-5B形でFe, Ni, Cr, Mo, Si, Na オよびCについて分析を行なった。Table. 5に測定条件を示す。なお浸漬断面についても線分析を行なったが、ナトリウム浸漬による被覆管表面の変質層厚さが薄いため構成元素の濃度変化は得られなかつた。

#### (8) 金属組織観察

組織観察は被覆管厚み方向について、特に被覆管の種類および浸漬温度による浸漬前後の組織変化の差に注目して光学顕微鏡により行なつた。観察組織は王水で腐食処理した。

Table 5 Conditions of Characteristic X-ray Analysis

Element	Characteristic X-ray	Crystat	Accelerating Voltage	Specimen Absorption Current	Remarks
Fe	L $\alpha$	*1 KAP	20 KV	0.05 $\mu$ A	$*1 C_6H_4(COOH)(COOK)$
	K $\alpha$	Li-F	"	"	
Ni	K $\alpha$	Li-F	"	"	
Cr	K $\alpha$	Li-F	"	"	
Mo	L $\alpha$	*2 ADP	"	"	$*2 NH_4H_2PO$
C	K $\alpha$	*3 STE	"	"	$*3 \cdot Pb(C_{17}H_{35}COO)_2$
Na	K $\alpha$	KAP	"	"	
Si	K $\alpha$	ADP	"	"	

(注) PRガス: A 90 v/v + CH<sub>4</sub> 10 v/v

## (9) 炭素の化学分析

ナトリウムによる被覆管の脱炭量を、特に被覆管の全肉厚の脱炭量を材質および浸漬温度の影響に着目し、燃焼法により求めた。使用装置の機種はLECO社のIR-12型である。分析試料は被覆管を3~5 mm長さに水中で輪切りにし、サンドペーパでハリ取りしたあと、最終的にアセトンで超音波洗浄した。分析値の最大変動幅は±50 ppm（相対変動幅±9%）空試験値は15 ppmであった。

## (10) 窒素および酸素の化学分析

ナトリウム浸漬による被覆管の材質および浸漬温度との窒素量および酸素量の変化をLECO社のTC-30型NITROGEN/OXYGEN DETERMINATORにより求めた。分析試料は炭素分析と同様の方法で作った。窒素および酸素の分析値の最大変動幅（相対変動幅）はそれぞれ±10 ppm（±4%）および±35 ppm（±9%）であり、空試験値はそれぞれ1~3 ppmおよび4~7 ppmであった。

## (11) リング引張試験

ナトリウム浸漬による被覆管強度の変化を短時間にしらべるため、インストロン引張試験機（モデルTT-CM-L）を使用し、20 °Cの室温大気中で、引張速度0.5 mm/min（クロスヘッドスピード）で試験を行なった。特に被覆管の材質、炭素および窒素の量および浸漬温度の効果に注目して行なった。リング引張試験片は、精密カッター（0.5 mm幅の薄刃）を使用して約1.4 mmの幅に被覆管を水中で輪切りにしたあと、1000番の湿式エメリー紙により1.000 mm±5 μmの精度まで試験片幅を調整して作った。

## (12) 融着試片の引張試験

ナトリウム浸漬中に半径方向の切断面で融着した被覆管の融着力を求めるため、リング引張試験に使用したインストロン引張試験機を使用し、20 °Cの室温大気中で引張速度0.05 mm/min（クロスヘッドスピード）で試験した。融着試験片にはFig.10に示すように両端に固定用治具を溶接付けした。

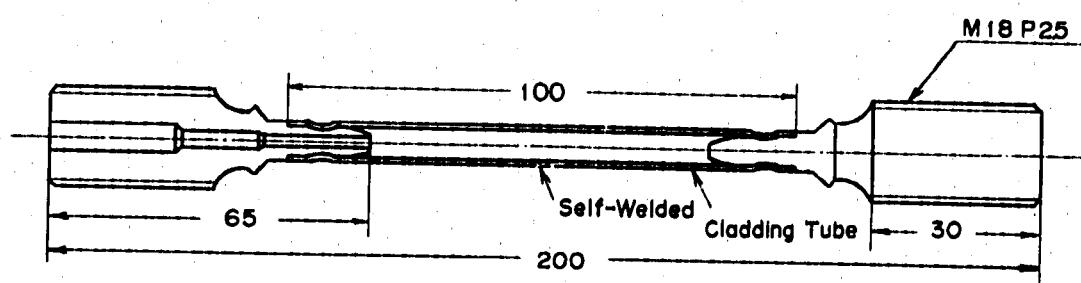


Fig. 10 Tensile Test Specimen of Self-Welded Cladding Tubes

### 3. 試験結果

#### 3.1 浸漬材の外観

**Photo. 1** にナトリウム浸漬前の被覆管の組立状態（加熱器容器取付け前）を示す。内筒管のまわりに 30 本の被覆管がナトリウム入口側でビス止めされており、ナトリウム出口側平板には熱電対ウエルが取付けられているのがわかる。

**Photo. 2** にはナトリウム浸漬後、加熱器容器を取りはずした状態を示す。特にナトリウム出口側で被覆管が銀白色を呈しているがこれはナトリウム腐食により金属元素が溶出したためである。

**Photo. 3** にはナトリウム処理した重担測定用 50 mm 被覆管をナトリウム入口側より出口側に取付け順に並べてある。重担増加を示す被覆管の外観は緑色（写真では黒っぽい）を呈し、重担減少を示すものは銀白色（写真では白っぽい）を呈していた。（重担変化データは後述する）またナトリウム入口に近い被覆管の外観はナトリウム浸漬前とよく似ており金属光沢を呈していた。一部の 50 mm 被覆管が最高温部で互いに触着していたので写真には 4 本の被覆管が触着した状態も示した。

**Photo. 4** は各種浸漬温度における S-II 被覆管表面の実体顕微鏡写真である。ナトリウム入口の低温部では試験前と同じ金属光沢を有しているが、600 °C付近では光沢が全くなくなっている。これは被覆管表面に沈着した腐食生成物である。より高温になると表面の構成元素の溶出が起り新しい金属表面が露出するため金属光沢がでてくる。S-II 材以外の 4 種類の被覆管も同様な外観を呈していた。

被覆管内面は低温部および高温部とも浸漬前と同じ金属光沢を有していた。また被覆管内面と中子の間に侵入したナトリウムが外面の流動ナトリウムと入れかわる可能性は Fig. 1 の試験片形状から考えて非常に小さく、被覆管内面の腐食は最初に侵入した少量のナトリウムによるものだけを考慮すればよい。よって外面の腐食とくらべると内面の腐食は全く無視できる。

なお各写真に記した No は低温側より数えた 50 mm 被覆管の配列順であり、カッコ内は Table. 3 に示した 50 mm 被覆管につけた刻印である。また温度は Fig. 9 より求められる 50 mm 被覆管各々の平均浸漬温度である。

後述の試験資料にも同様に No および温度を示した。

#### 3.2 浸漬表面の走査型電顕観察

**Photo. 5** から **Photo. 9** にナトリウム中浸漬前後の各種被覆管表面の走査型電顕写真を示す。

ナトリウム中浸漬前の被覆管表面をみると、K-II 材に引抜き時に生じたと思われる著しいひっかき傷がみられるが、他はなめらかな表面を呈している。特に C 材がなめらかである。（これらのこととは Fig. 14 に示した表面あらさ曲線とよく一致している）

ナトリウム中浸漬後の被覆管表面については、浸漬温度の影響をみるために、448 °C, 548 °C および 652 °C の 3ヶ所の表面をしらべた。いずれの被覆管も 448 °C および 548 °C では浸漬表面に沈着物

がみられ、特に高溫種沈着物が大きく成長しており浸漬前の表面をほぼ完全に覆っている。652 °Cでは、結晶粒および粒界が現われ組成元素の溶出が起っている。これらの傾向はFig.11からFig.13に示したS-II材、S-III材およびK-III材の重量変化曲線と一致している。重量測定を行なわなかったK-III材およびC材も同様の重量変化傾向を示すと考えられる。また652 °Cの表面には所々キャビティがみられる。これは後述する652 °Cナトリウム浸漬後の被覆管断面の組織写真にみられるキャビティと同一のものと考えられる。

### 3.3 重量測定による腐食量

Fig.11およびFig.12には各々S社およびK社の供試被覆管のナトリウム浸漬前後の重量変化および年間厚み変化を示す。Fig.9に示したように温度がナトリウム流にそって直線状に上昇したので被覆管の位置と温度の関係は図に示した横軸のように対応する。重量変化量は50 mm被覆管の中央部の温度に対しプロットした。S-II材1本、S-III材4本およびK-III材が5本が試験され、図のようにバラつきがあるが温度に対する重量変化のおおよその傾向はよく似ている。すなわち低温側より次第に重量が増加し600 °C付近で最大になり、その温度をこえるとこれが減少はじめ最高温部では金属元素が溶出して重量減となっている。これらのこととは走査型電顕による表面観察と一致している。

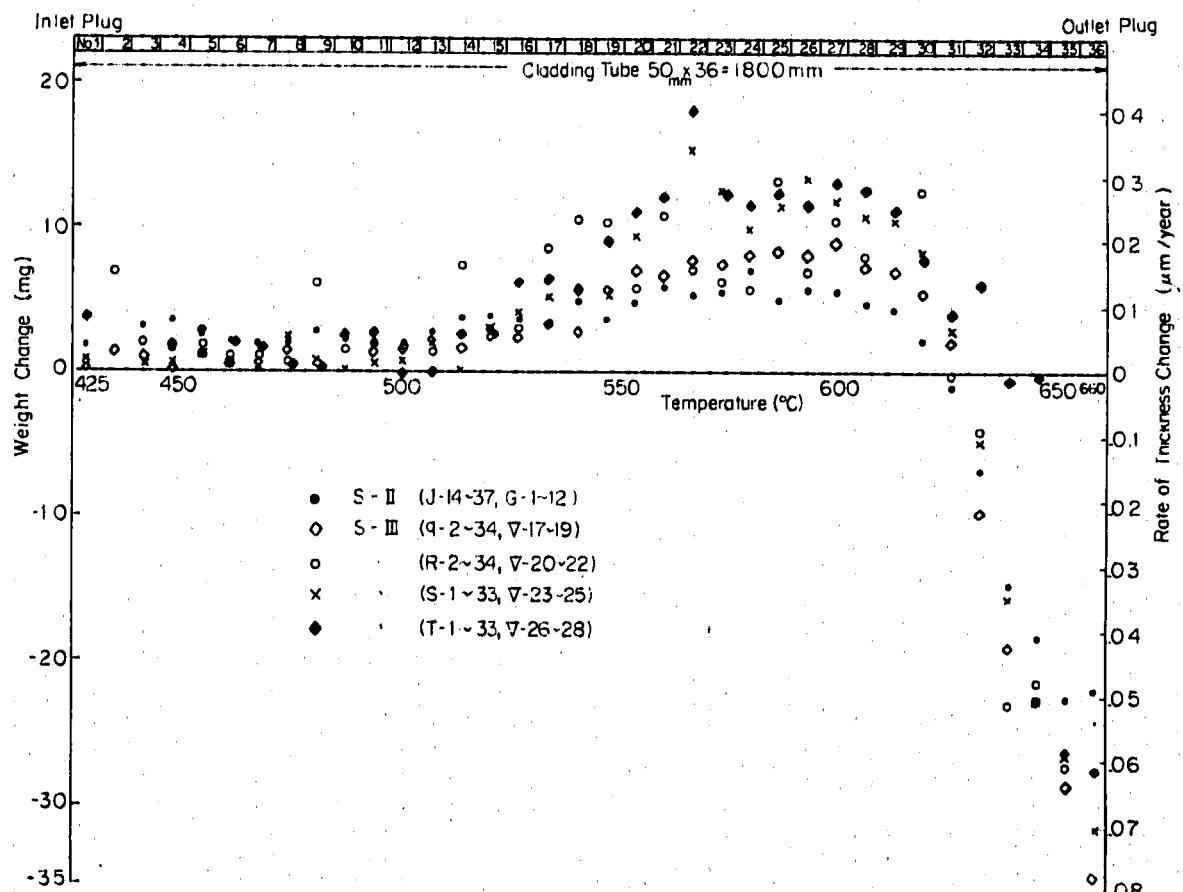


Fig. 11. Weight Changes of S-II and S-III Cladding Tube Specimens

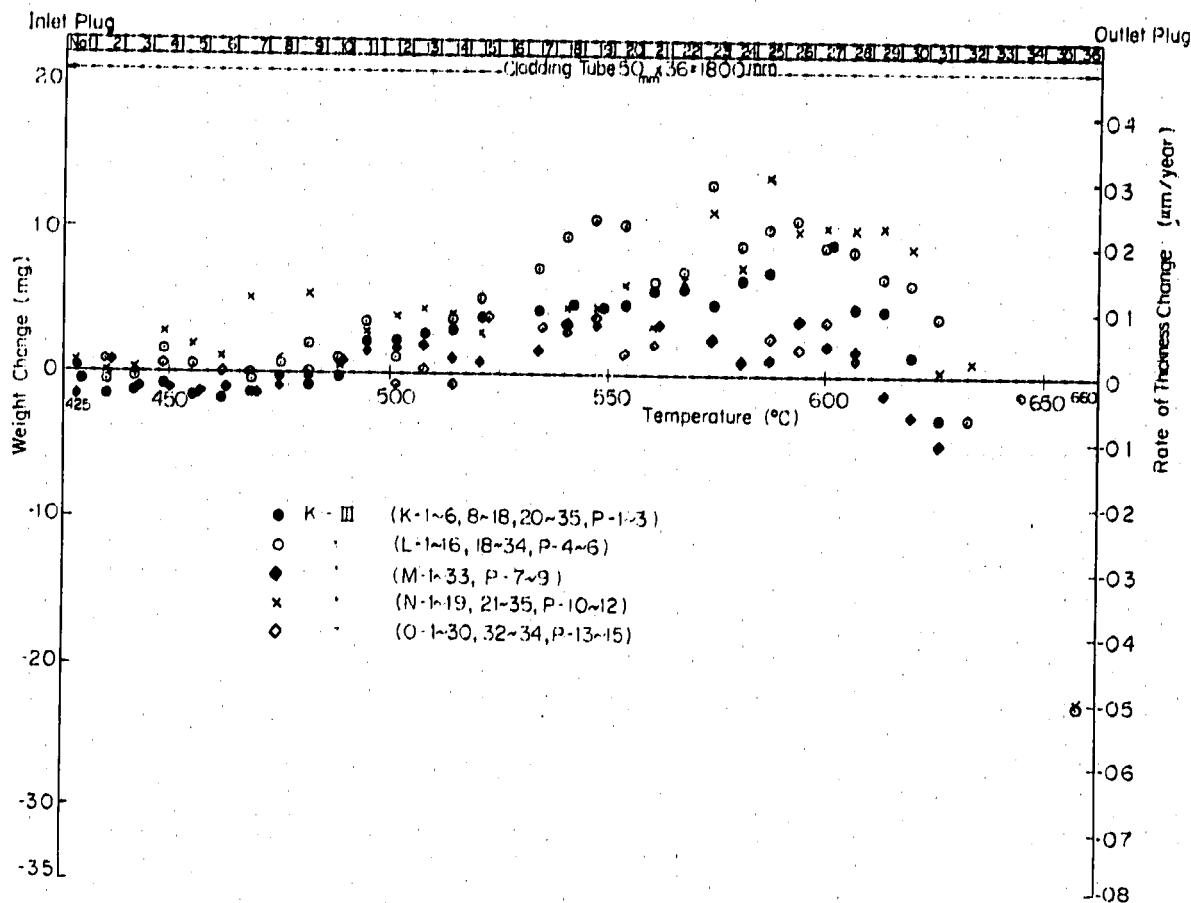


Fig. 12 Weight Changes of K-III Cladding Tube Specimens

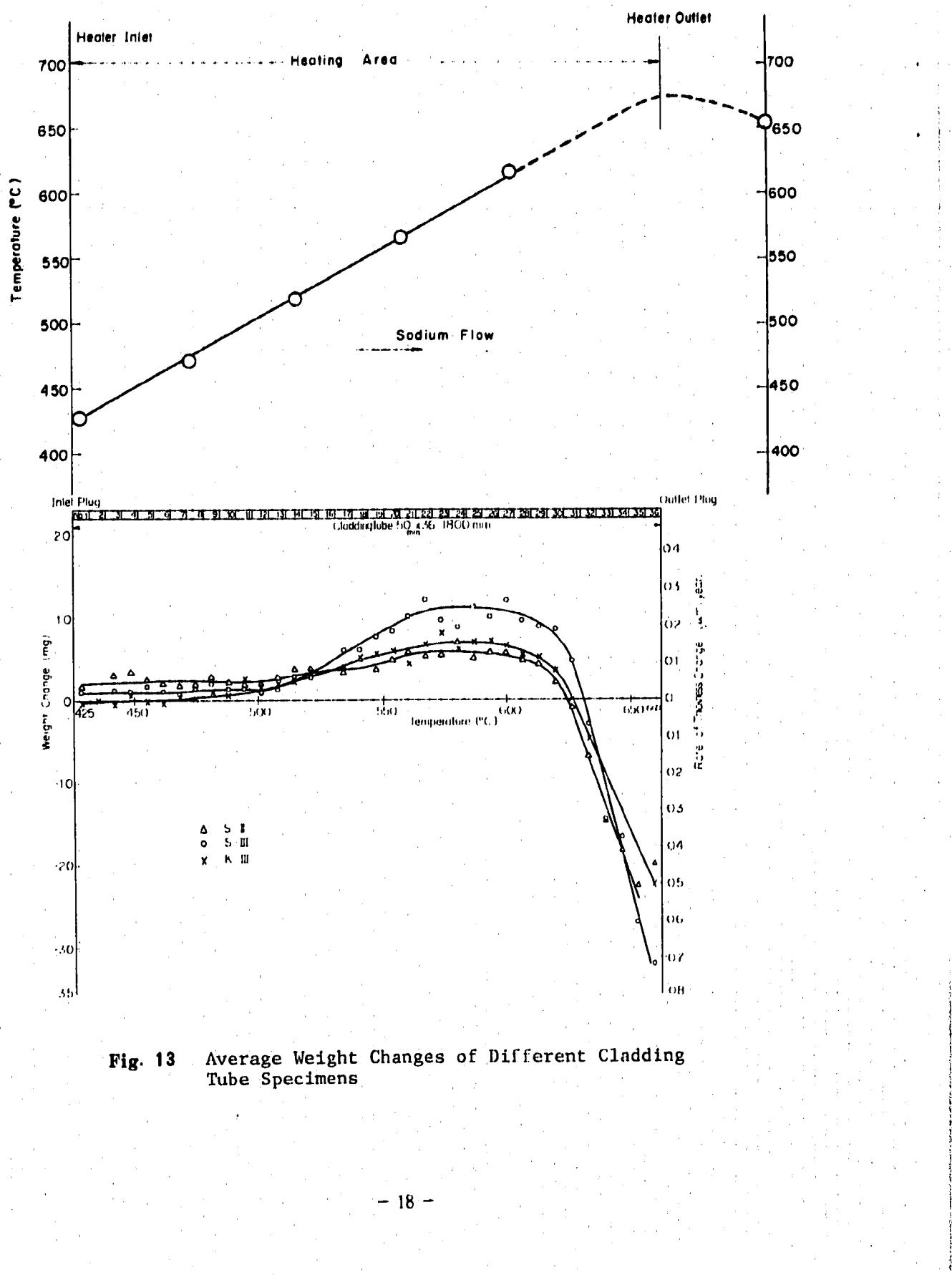
Fig. 13 には Fig. 11 および Fig. 12 に示した S-II 材の重量変化と、S-Ⅲ材 4 本および K-Ⅲ材 5 本の重量変化の平均値が温度に対しプロットされている。S-Ⅲ材の重量変化が最も大きく、約 520 ~ 630 °C で最も大きな重量増加を、最高温部では逆に最も大きな重量減少を示した。

なお 3.1 没漬材の外観の項に示したように被覆管内面の腐食は無視でき、重量変化はすべて被覆管外面で生じたと考えられる。

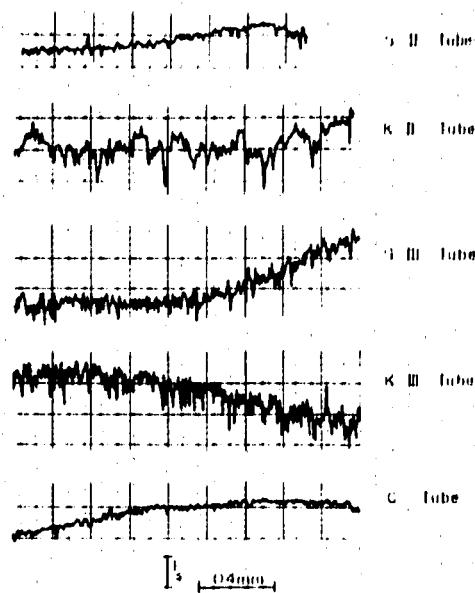
### 3.4 ナトリウム没漬による表面あらさ変化

Fig. 14 にナトリウム没漬前の各種被覆管の表面あらさを示す。S-Ⅲ材と C 材が最も小さい表面あらさ ( $0.3 \mu\text{m}$ ) を、K-Ⅲ材が最も大きい表面あらさ ( $1.7 \mu\text{m}$ ) を示している。また 2 次試作材および実機材とも K 材の表面あらさの方が S 材のものより大きい。これらのこととは Photo. 5 ~ Photo. 9 に示した電顕写真と一致している。

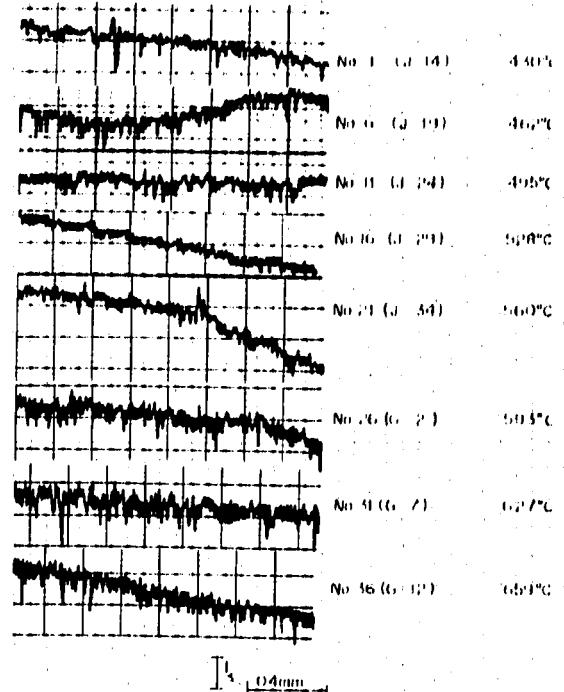
Fig. 15 から Fig. 17 には各々 S-Ⅲ材、S-Ⅲ材および K-Ⅲ材の試験後の表面あらさ曲線を示す。試験温度の影響をしらべるため図には各種試験温度における試験片の表面あらさが示されており、また各々の曲線には 50 mm 被覆管の刻印 (カッコ内) と、ナトリウム入口側より数えた 50 mm 被覆管の No も示す。いずれの被覆管も温度が高い程表面あらさが増加している。



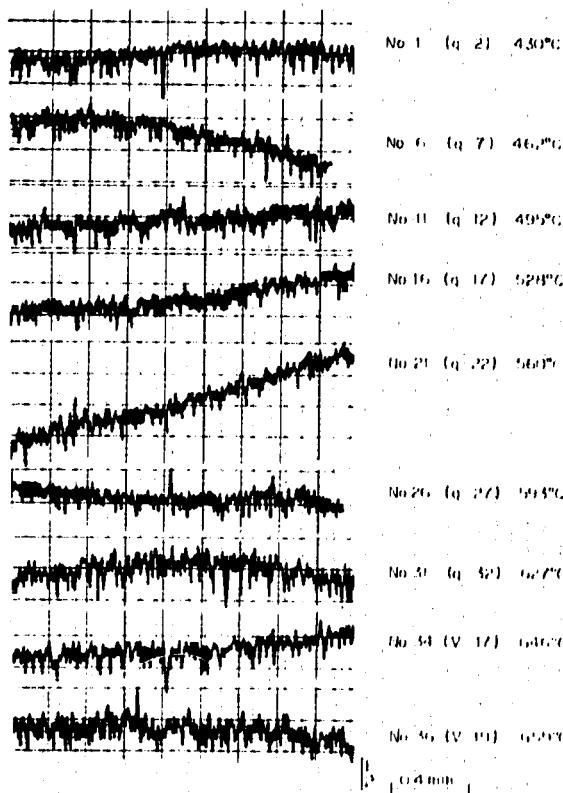
**Fig. 13 Average Weight Changes of Different Cladding Tube Specimens**



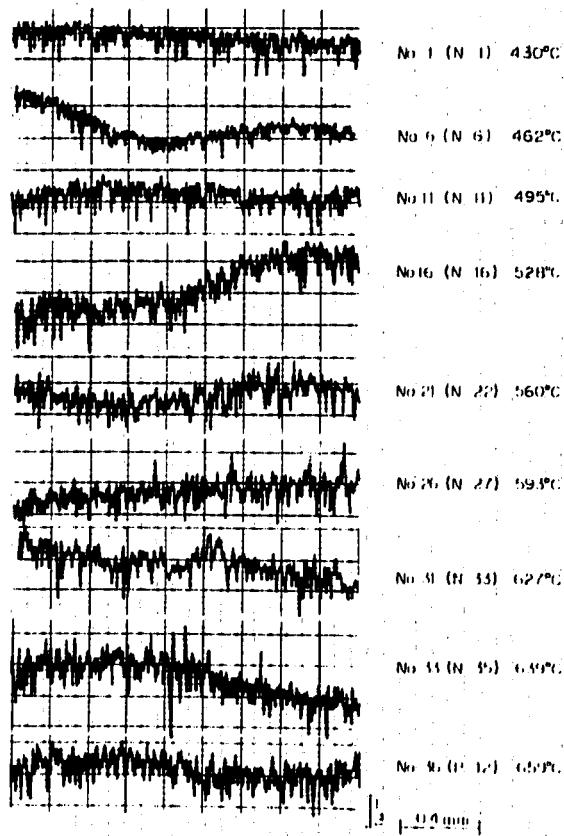
**Fig. 14** Surface Roughness of Cladding Tube Specimen as Received



**Fig. 15** Surface Roughness of S-II Tube after Tested



**Fig. 16** Surface Roughness of S-III Tube after Tested



**Fig. 17** Surface Roughness of K-III Tube after Tested

Table. 6 は Fig. 14 ~ Fig. 17 より求めた被覆管の試験前後の表面あらさ値を示す。ナトリウム人口付近では表面あらさ変化が小さいが温度上昇とともに表面あらさ変化が増加している。

Fig. 18 は Fig. 15 に示した被覆管のうち No. 1, No. 26 および No. 36 の表面あらさを英國 RANK TAY LOR HOBSON 社製 TALYSTEP により測定したものである。Fig. 18 の方が Fig. 15 より表面あらさプロファイルが精密で、細かい凹凸がよくできているため表面あらさ値が大きくなっている。これは触針先端の半径が Fig. 15 で使用した表面あらさ計では  $5 \mu\text{m}$  であるのに対し、英國製のものは  $0.1 \mu\text{m}$  ときわめて小さくより小さくぼみまで正確にトレースできるからである。

Table 6 Surface Roughness of Cladding Tube Specimen

Manufacturer	As Received	Surface Roughness, $\mu\text{m}$		
		After Tested		
		No. 4 Specimen, 448°C	No. 19 Specimen, 548°C	No. 35 Specimen, 652°C
Second Trial Fabrication Tube for JOYO	SUMITOMO	0.3	0.3	0.9
	KOBE	1.7	1.7	1.7
Tube to Be Used for JOYO	SUMITOMO	0.9	1.1	1.0
	KOBE	1.0	1.0	1.1
	CARPENTER	0.3	0.4	0.6

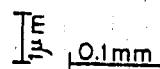
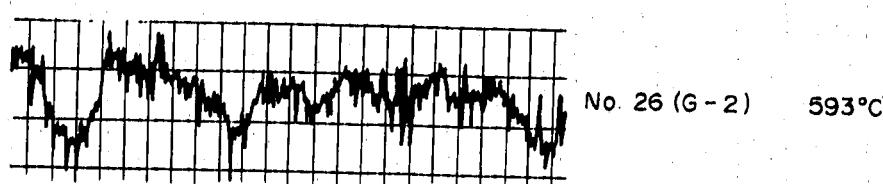
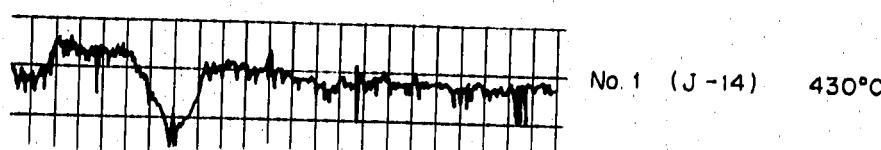


Fig. 18 Surface Roughness of S-II Tube Determined by TALYSTEP

### 8.5 ナトリウム浸漬によるかたさ変化

Fig.19に各種被覆管のナトリウム浸漬前後のマイクロビッカースかたさを浸漬表面からの距離に関しプロットした。このうち被覆表面におけるかたさは浸漬表面に垂直に圧痕を押して求めた。

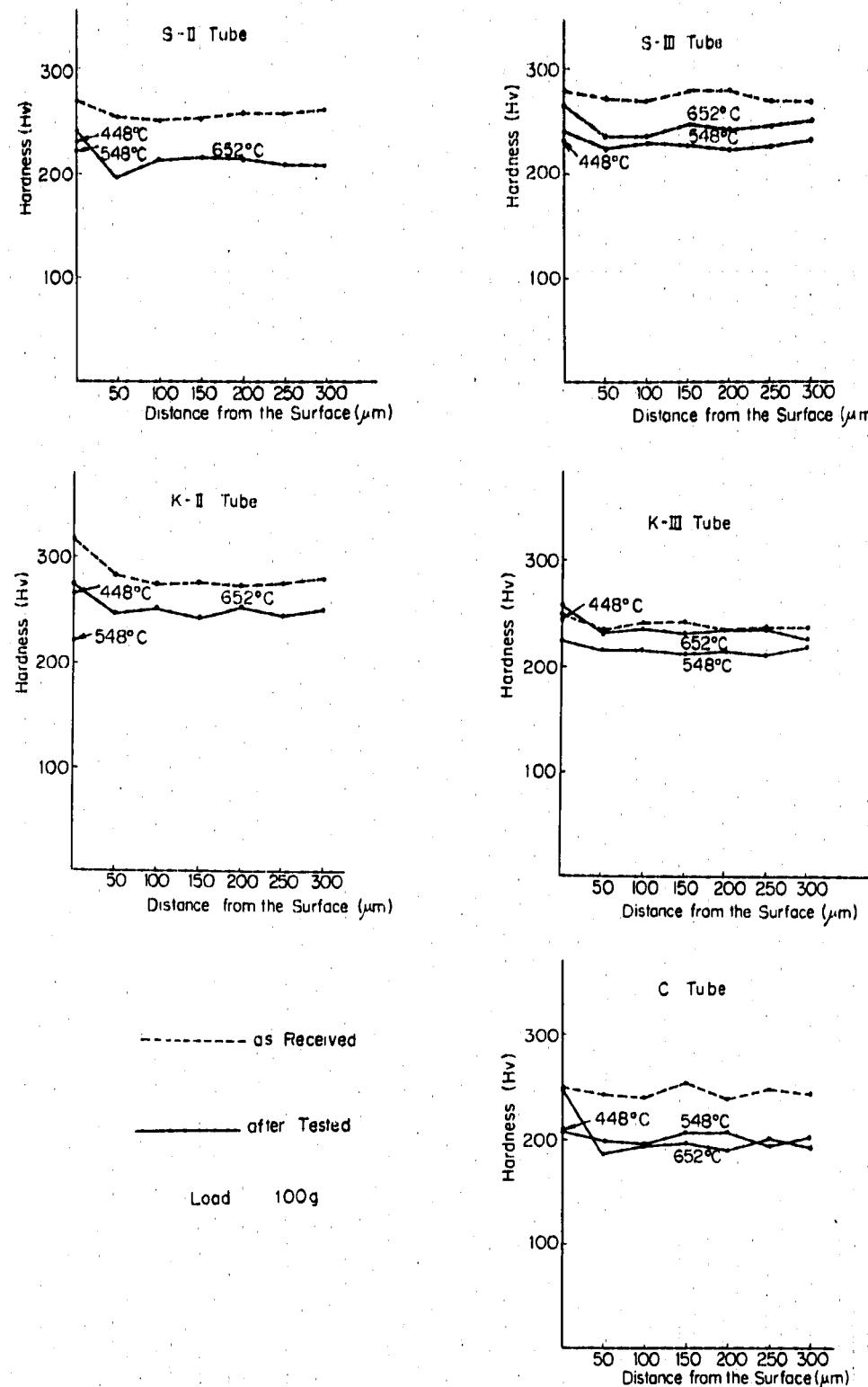


Fig. 19 Hardness vs. Distance from the Surface of Different Cladding Tubes at Different Temperatures

Table 7 Average Hardness

Cladding Tube	Hardness (H <sub>v</sub> )		
	as Received	After Tested at 548°C	After Tested at 652°C
S-II	258	—	214
S-III	274	230	246
K-II	283	—	252
K-III	240	216	237
C	245	201	201

また Table. 7 は Fig. 19 にプロットした深さ方向 7 点のかたさの平均値である。

ナトリウム浸漬前の被覆管のかたさを比較すると、S 材では S-Ⅲ材の方が S-Ⅱ材より高くなっているが K 材では逆に K-Ⅲ材の方が K-Ⅱ材より低くなっている。また 2 次試作材のかたさは K-Ⅱ材の方が S-Ⅱ材より高く、実機材のかたさは S-Ⅲ材が最も高く K-Ⅲ材と C 材が同じ位である。被覆管内部と表面のかたさはほとんど同じであるが、K-Ⅱ材では表面がよりかたくなっている。

ナトリウム浸漬後のかたさは長時間の高温ナトリウム中浸漬による熱影響のため浸漬前より低く

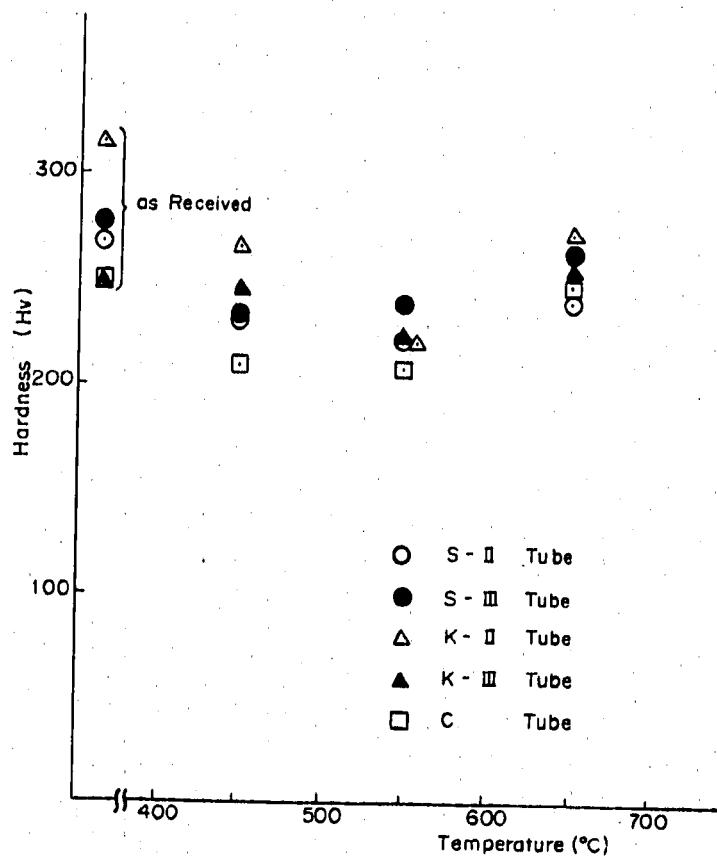


Fig. 20 Hardness vs. Temperature at the Surfaces of Cladding Tubes

なっている。ただし  $652^{\circ}\text{C}$  に浸漬された K-II 材は被覆前とほぼ同じかたさを示している。実機材について  $548^{\circ}\text{C}$  と  $652^{\circ}\text{C}$  の平均かたさを比較すると、S-II 材と K-II 材は高温ほどかたくなるが、C 材は同じである。

Fig.20 は被覆管表面のかたさを温度に関しプロットしたもので、いずれも浸漬前よりかたさが低下しているが高温ほどかたくなる傾向がある。

Fig.21 は Table.7 の平均かたさ値の試験前後の比を温度に対しプロットしたものである。C 材を除くといずれも高温ほどかたさ低下率が小さくなっている。C 材は温度の影響がない。

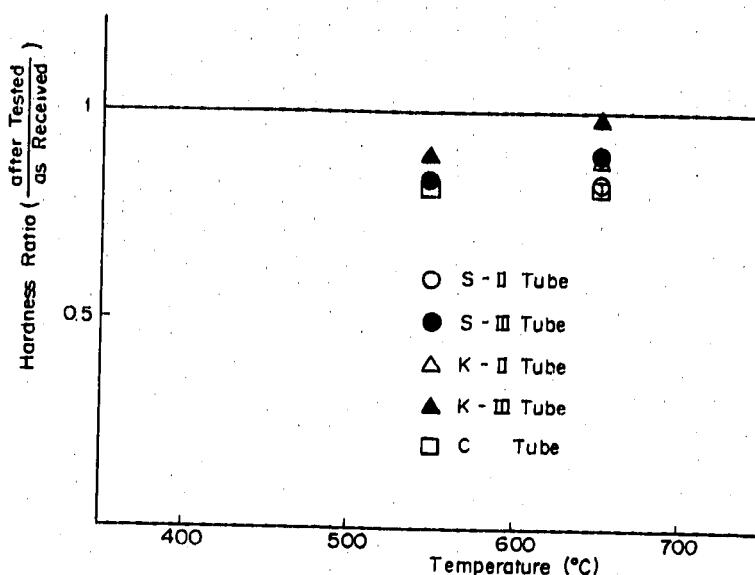
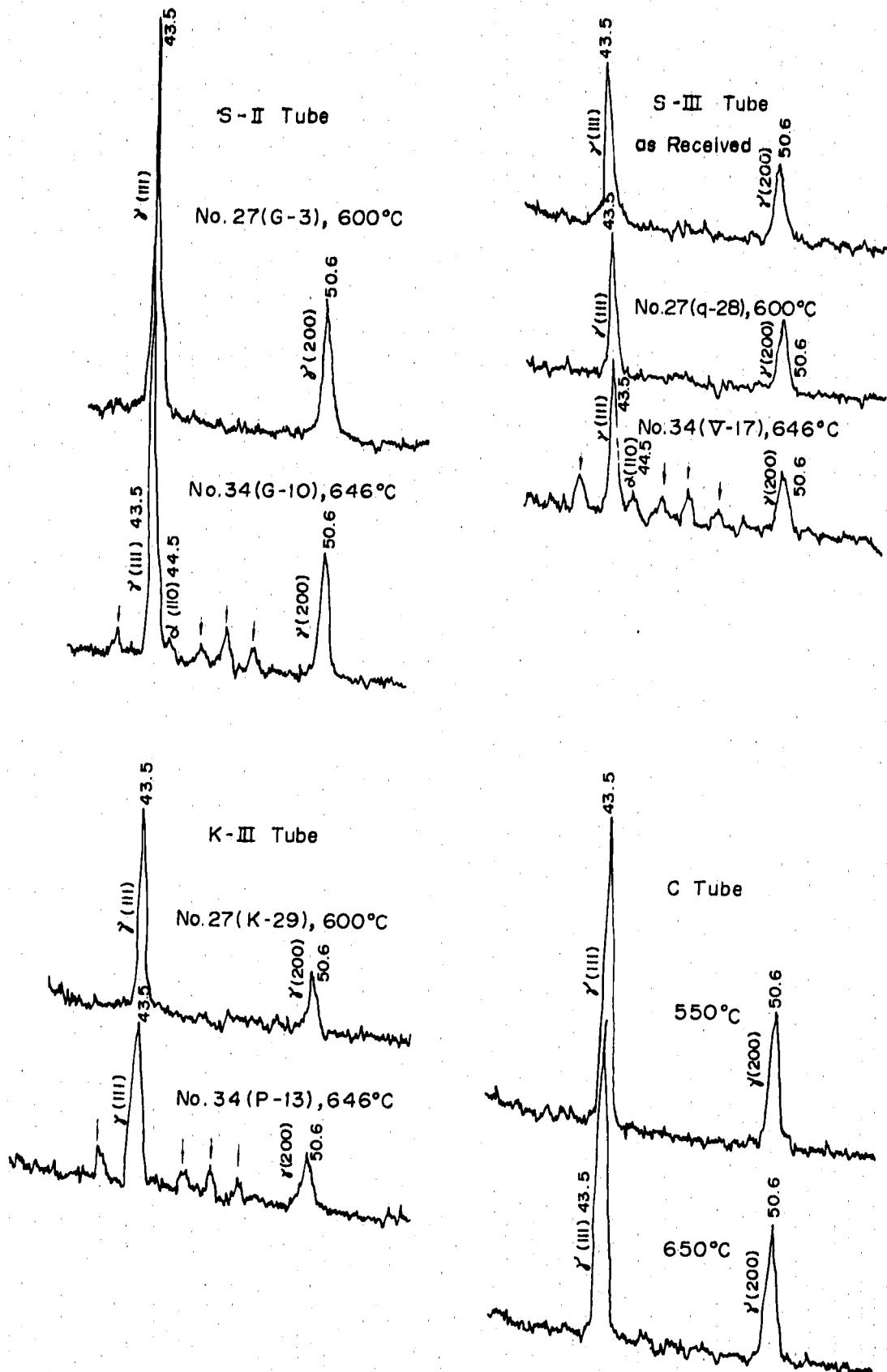


Fig. 21 Ratio of after Tested Hardness to as Received Hardness

### 3.6 浸漬表面のX線回折

ナトリウム浸漬による被覆管表面の結晶形態の変化をX線回折によりしらべた（ただしK-II材を除く。）

Fig.22 に受入れ材と浸漬材のX線回折強度を示す。測定条件はすべて同じであったが、S-II材とC材においてアピーカーが特に強くなっている。 $\gamma \rightarrow \alpha$  変態はS-II材とS-III材でわずかにみとめられただけである。Fig.13 によるとナトリウム腐食量はS-IIおよびS-III材の方がK-III材よりも大きくナトリウム腐食により $\alpha$ が生成するのがわかる。またC材を除く3種類の被覆管の約  $650^{\circ}\text{C}$  浸漬材には↓印で示したピーク（およそ  $42.1^{\circ}, 45.5^{\circ}, 46.6^{\circ}$  および  $47.8^{\circ}$  の回折角）があらわれた。この回折角より Bragg の式から求めた格子間隔（およそ  $2.14\text{ \AA}, 1.99\text{ \AA}, 1.49\text{ \AA}$  および  $1.90\text{ \AA}$ ）をASTM Card File Data でしらべると、FeCr- $\sigma$  相かNiCoCr- $\sigma$  相に最も近い。また4つのピークの強度比からもこれらの $\sigma$ 相の可能性が強い。NiCoCr- $\sigma$ 相はMihalisin (AIME) <sup>(5)</sup> らがNi基超合金 (IN 100) ではじめてみいだした金属間化合物で  $1500^{\circ}\text{F}$  で応力-歪特性に有害作用を示すが、 $650^{\circ}\text{C}$  での生成は疑わしく、本試験の析出物はFeCr- $\sigma$ 相と考えられる。



**Fig. 22** Results of X-Ray Diffraction of Different Cladding Tube Surfaces

## 3.7 浸漬表面の蛍光X線分析

浸漬表面近傍の成分変化を蛍光X線により調べた。

Table.8は浸漬前後のS-亜材についてのFe, Cr, Ni, Mo, Mn, Co およびSi の蛍光X線計測

Table 8 Results of X-ray Fluorescence Analysis

	As Received	No.27,(q-28), 600°C	No.34,(V-17), 646°C
Fe	942992	901468	940624
Cr	282698	312958	287018
Ni	250550	234106	234567
Mo	121129	122112	122737
Mn	38997	31048	25329
Co	8897	8810	8971
Si	3750	3750	3654

Counting Time 80 sec

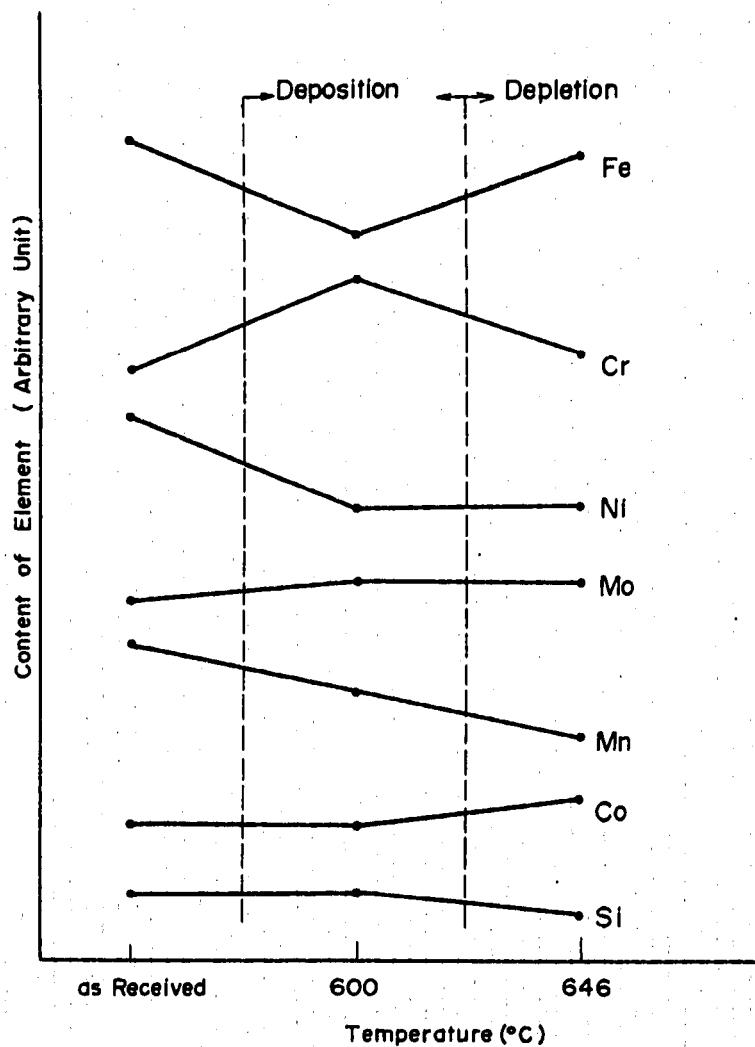


Fig. 23 Changes of Constituent Elements in the Neighbor of Cladding Tube Surfaces

数を示す。おおまかな成分の増減を知ることを目的としたので標準試料による検量線は作らなかった。計測数(N)から統計計測誤差 ( $\sqrt{N}$ ) を差引いても計測数には明かな差がある。

Fig.23はTable.8の計測数変化を浸漬温度に関しプロットしたものである。同時にFig.13にもとづいて沈着領域と溶出領域も示した。浸漬前とくらべ、600°C(沈着域)ではCrが明かな増加を示している。Moの増加はわずかで有意差があるかどうかはっきりしない。逆にFe, Ni, Mnが減少したが、Crの表面沈着による相対的減少が一因をなしていると考えられる。646°C(溶出域)ではNiとMnが減少した。特にMnの減少が著しい。FeとCrは浸漬前とは同じである。MoとCoはわずかに増加し、Siはわずかに減少しているが有意差があるかどうかはっきりしない。

### 3.8 浸漬表面の組成変化

ナトリウム腐食による浸漬表面の組成変化をみるためXMA分析を行なった。従来の研究では腐食量が年間に換算すると数  $\mu\text{m}$ ～数  $10 \mu\text{m}$ あり変質層厚みが充分あつたため深さ方向の組成変化をしらべることができた。本試験ではFig.13に示したように年間の腐食量が高々  $1 \mu\text{m}$ と少なく深さ方向のXMA分析はできなかった。

Fig.24からFig.27に浸漬前後のFe, Cr, Ni, Mo, Si, NaおよびCの線分析結果を示す。最大分析距離は  $200 \mu\text{m}$  であった。同時に3元素しか分析できないため図は同時分析した3元素づつにま

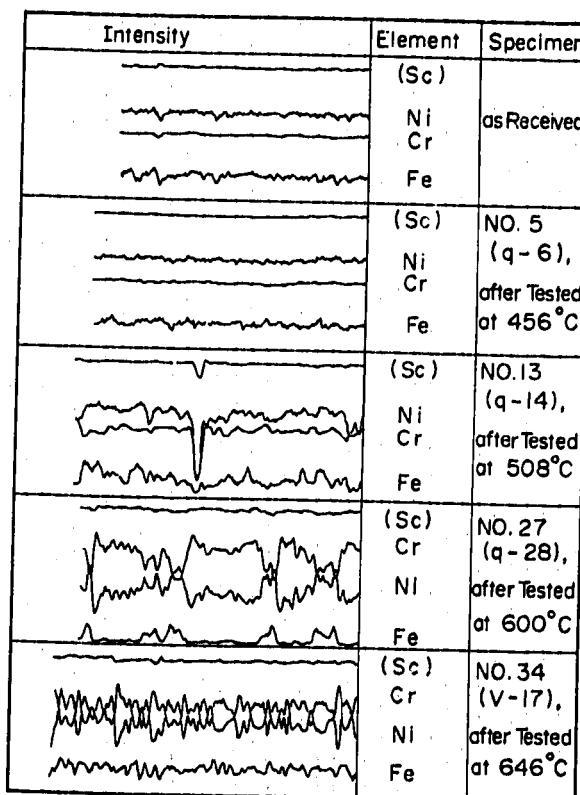


Fig. 24 Electron Probe Micro-analysis of Cladding Tube Surface (Ni, Cr, Fe)

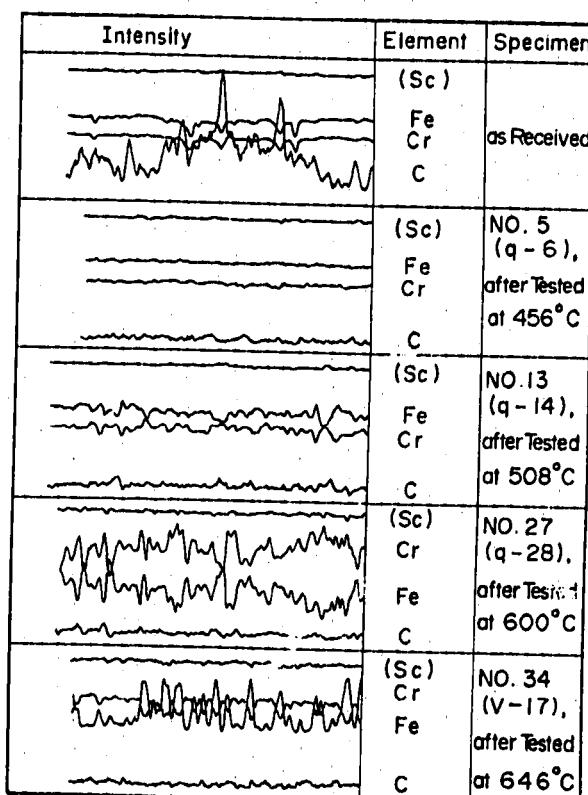


Fig. 25 Electron Probe Micro-analysis of Cladding Tube Surface (Fe, Cr, C)

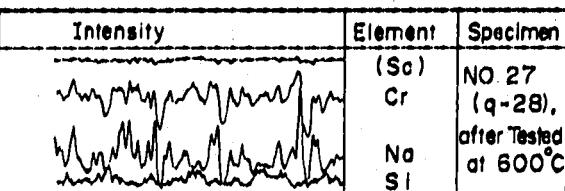
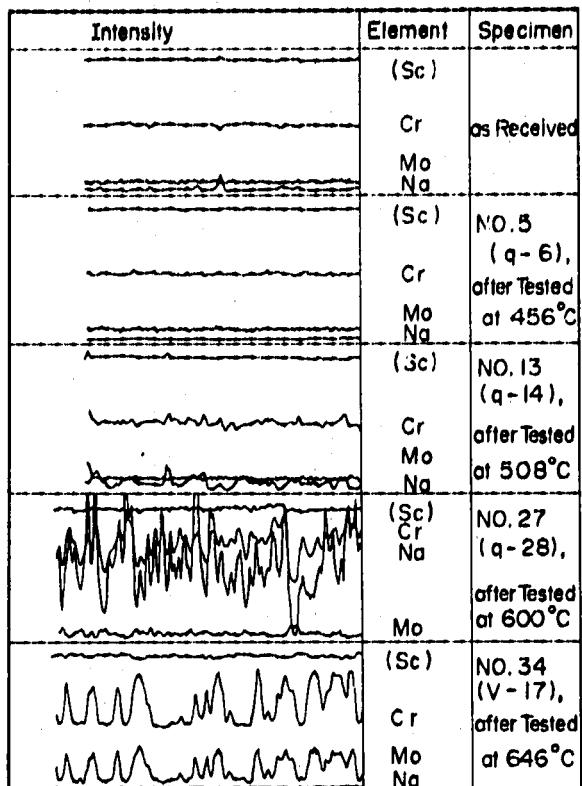


Fig. 27 Electron Probe Micro-analysis of Cladding Tube Surface (Cr, Na, Si)

Fig. 26  
Electron Probe Microanalysis of Cladding Tube Surface (Cr, Mo, Na)

とめた。各元素の強度の比較ができるようチャートのフルスケールを各元素ごとに一定とし(Table. 5 参照)、また 3 元素の中に共通元素として必ず Cr を含め分析を行なった。Fig.24 から Fig.27 までの Cr の強度を浸漬温度に関し比較するとよく一致しており分析時期および同時分析元素が異なっても定性的比較ができることになる。

Fig.24 と Fig.25 は各々 Ni, Cr, Fe と Fe, Cr, C の変化を浸漬温度ごとに示したものである。508 °Cまでは表面の成分の凹凸が多少大きくなることを除き成分量は偏在なく一定している。600 °Cになると Fe および Ni が浸漬前とくらべ半減し、Cr が約 2 倍に増加しており、また Ni と Fe のピークが一致し Cr のピークが逆転している。Fig.13 でも見られるように 600 °C では表面に沈着が起っており、この沈着物の主成分は Cr と考えられる。また、沈着物で表面が被われるため、相対的に Fe, Ni 比が減少したものと考えられる。646 °C では Fe, Ni, Cr とも浸漬前とくらべ平均の成分量には明白な変化がみられないが、凹凸が著しくなっている。また 600 °C と同様に Ni と Fe のピークは一致し、Cr が反転している。温度上昇とともに凹凸がはげしくなった原因は Table. 6 に示したように高温ほど表面あらさが大きくなつたことがあげられる。Fig.13 によると 646 °C では溶出が起っているが、XMA 分析では明白にこれを示すことはできなかった。

Fig.26 は Cr, Mo, Na に関する XMA 線分析結果である。この図で特長的なことは、Cr と Na の

(注) Fe については 2 種類の分光結晶を用いたため Fig. 24 と Fig. 25 では Fe の強度が異なる。Fig. 24 では KAP を、Fig. 25 では LiF を用いた。

ピークが  $600^{\circ}\text{C}$  の沈着部で一致し、 $646^{\circ}\text{C}$  の溶出部で一致しないことと、 $646^{\circ}\text{C}$  の溶出部で Cr と Mo のピークが一致したことである。

**Fig.27** は  $600^{\circ}\text{C}$  の Cr, Si, Na に関する XMA 線分析結果である。Fig.27 に示したように Cr と Na のピークは一致しているが、Si は明白な対応を示さなかった。

### 3.9 浸漬材の金属組織

**Photo.10** にナトリウム浸漬前の被覆管半径方向断面の光学顕微鏡組織写真を示す。S-II材およびC材の結晶粒が他より大きくなっている (**Table. 2** 参照)。すべての被覆管には双晶がでている。いずれの材料も厚さ方向には組織上の不均一性は全くみとめられない。

**Photo.11** および **Photo.12** に S-II材およびK-II材それぞれのナトリウム浸漬後の被覆管半径方向断面の組織を示す。浸漬温度の影響を見るため  $448^{\circ}\text{C}$ ,  $548^{\circ}\text{C}$  および  $652^{\circ}\text{C}$  の 3ヶ所の被覆管の組織をしらべたところ、高温になる程結晶粒界すべり線および双晶界面に炭化物が多く析出し、 $652^{\circ}\text{C}$  では粒内析出が生じ粒界が不鮮明になった。流動ナトリウムとの接触面近傍にはナトリウム腐食にもとづく組織変化は明白にはみとめられない。しかし  $652^{\circ}\text{C}$  流動ナトリウムとの接触面近傍の結晶粒界に多くのキャビティがみられる。これは **Photo. 5** ~ **Photo. 9** に示した  $652^{\circ}\text{C}$  ナトリウム中浸漬表面の走査型電顕写真にみられるキャビティおよび S-III および K-III 材について行なったクリープ試験後の断面組織中にみられるキャビティと同一のものと考えられる。クリープ試験ではあきらかに外力による割れであるが、本試験では外力は考へられずキャビティの生成過程および原因ははっきりしない。

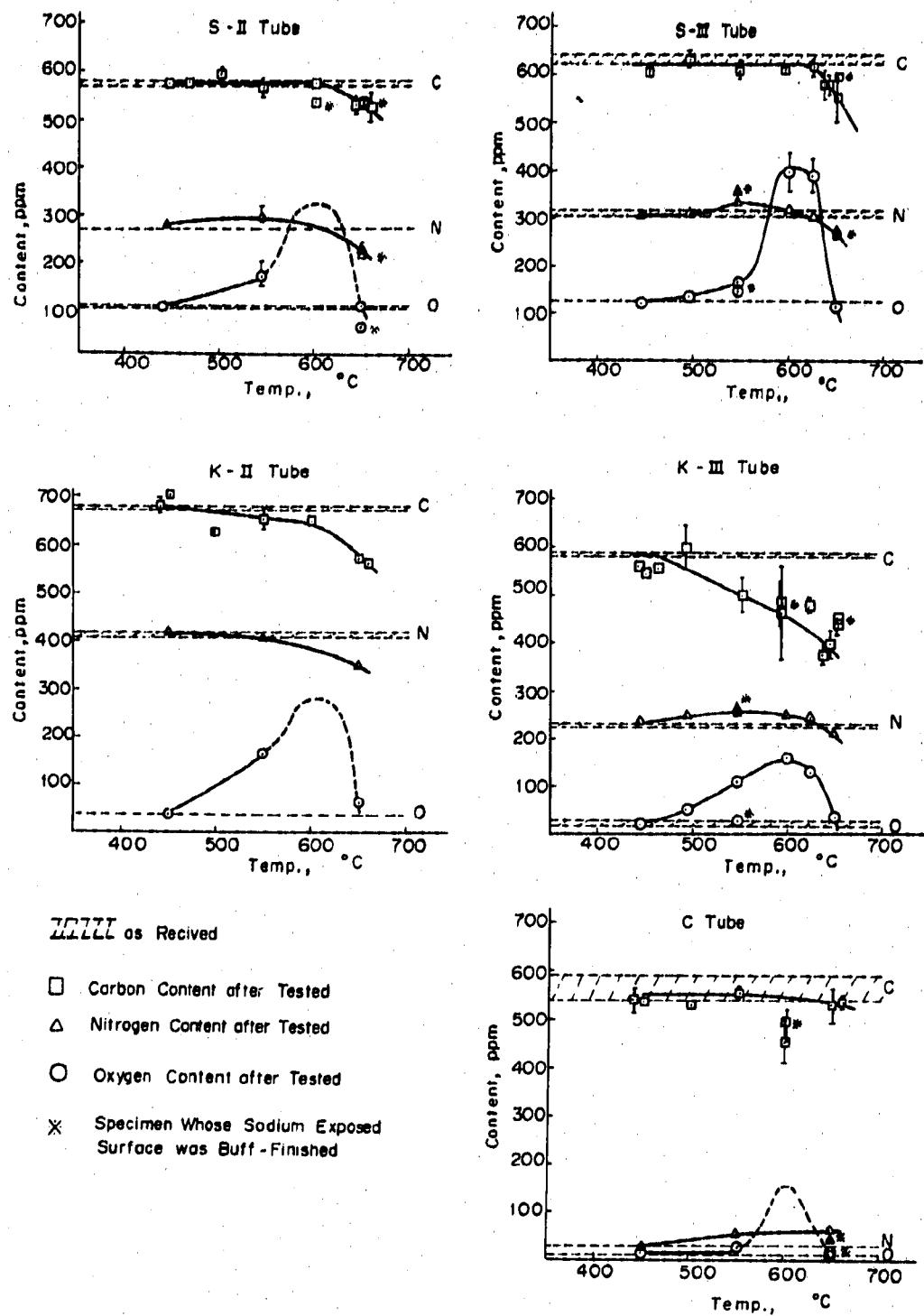
**Photo.13** ~ **Photo.15** に S-III材、K-II材およびC材それぞれのナトリウム浸漬後の半径方向断面組織を示す。2次試作材と同様に高温になる程結晶粒界、すべり線および双晶界面に炭化物が多く析出し、 $652^{\circ}\text{C}$  では粒内析出が生じ粒界が不鮮明になっているが、ナトリウム腐食による明白な組織変化はみとめられない。しかし  $652^{\circ}\text{C}$  流動ナトリウムとの接触面近傍の結晶粒界にキャビティが生じている。特に S 材のうち S-II 材はキャビティが少なかったが S-II 材は厚み全体に分布している。

### 3.10 浸漬材の炭素、窒素および酸素分析

炭素および窒素は被覆管の機械的性質に影響を与えると言われている。<sup>(7),(30),(32),(36),(38),(40),(41),(42)</sup>

またナトリウム中の材料の質量移行は溶存酸素量に依存するので、ナトリウム系全体に関する質量移行過程のうち材料表面上では酸化物が生成する (Double Oxide が生成するという報告が多くある) と言われている。<sup>(11),(24)</sup>

**Fig.28** は各種被覆管のナトリウム浸漬前後の炭素、窒素および酸素の Bulk 分析値を浸漬温度に関しプロットしたもので、各プロットには変動幅も示した。すべての被覆管は、低温では変化ないが高温になると脱炭が起る。特に K 材で著しい。また C 材を除くすべての被覆管では最高温部付近で脱窒が起る。しかし炭素の場合と違い低温部で浸窒が起り約  $550^{\circ}\text{C}$  にそのピークがあ



**Fig. 28** Changes of Carbon, Nitrogen and Oxygen Content of Different Cladding Tubes at Different Temperatures

る。C材の炭素量はほとんど変化がなく、また窒素量は最高温部でも増加している。酸素量は温度の中間領域で増加し、S-II材およびK-II材について実線で示したように約600°Cに最大値がある。S-II材、K-II材およびC材にも同様な傾向があると考えられ图には破線で示した。また被覆管のナトリウム浸漬表面層（腐食変質層）と内部との間にこれら元素の存在量に差がないかを調べるために、一部試料の表面層をバフ研摩したあと分析した。その結果炭素および窒素の変化は表面層だけでなく内部まで及んでおり、酸素の変化は表面層ではなくど生じているのがわかった。

Fig.29は被覆管の初期炭素量とFig.28より求めた脱炭開始温度との関係を示す。图には4.3項に紹介するSnyderら(ANL)<sup>(32)</sup>の値も示した。脱炭開始温度の初期炭素量に対する依存性はみられない、ヒートの相違により脱炭開始温度が異なる。K材はS材およびC材より脱炭開始温度が約150°C低くなっている。

Fig.30は被覆管の初期窒素量とFig.28より求めた脱窒開始温度との関係を示す。炭素の場合と異なり、脱窒開始温度は初期窒素量に依存して直線関係がある。最小自乗法によりこの関係を求める T = 772 - 0.59 C<sub>0</sub> (T: 脱窒開始温度°C, C<sub>0</sub>: 初期窒素量ppm) であった。C材は最高温部(650°C)でも脱窒しなかったので图には↑印で示した。

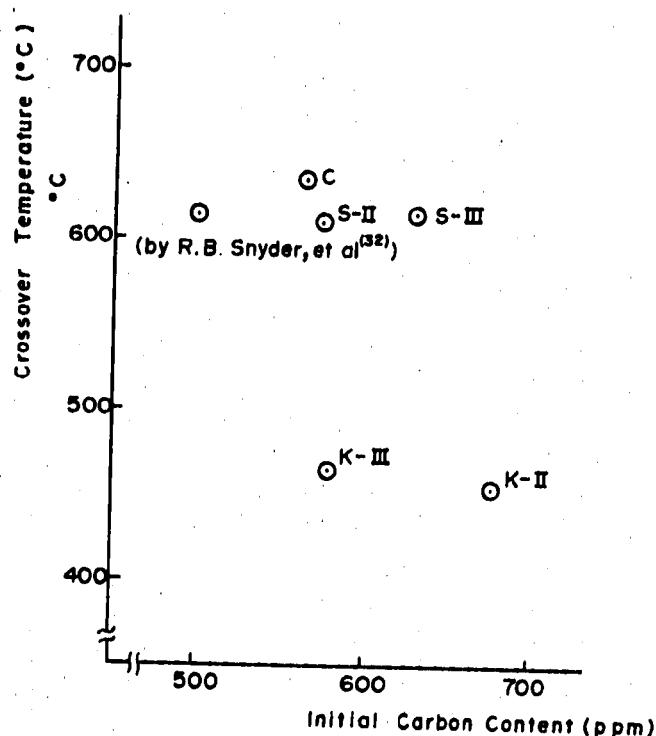


Fig. 29 Initial Carbon Content vs. Beginning Temperature of Decarburization

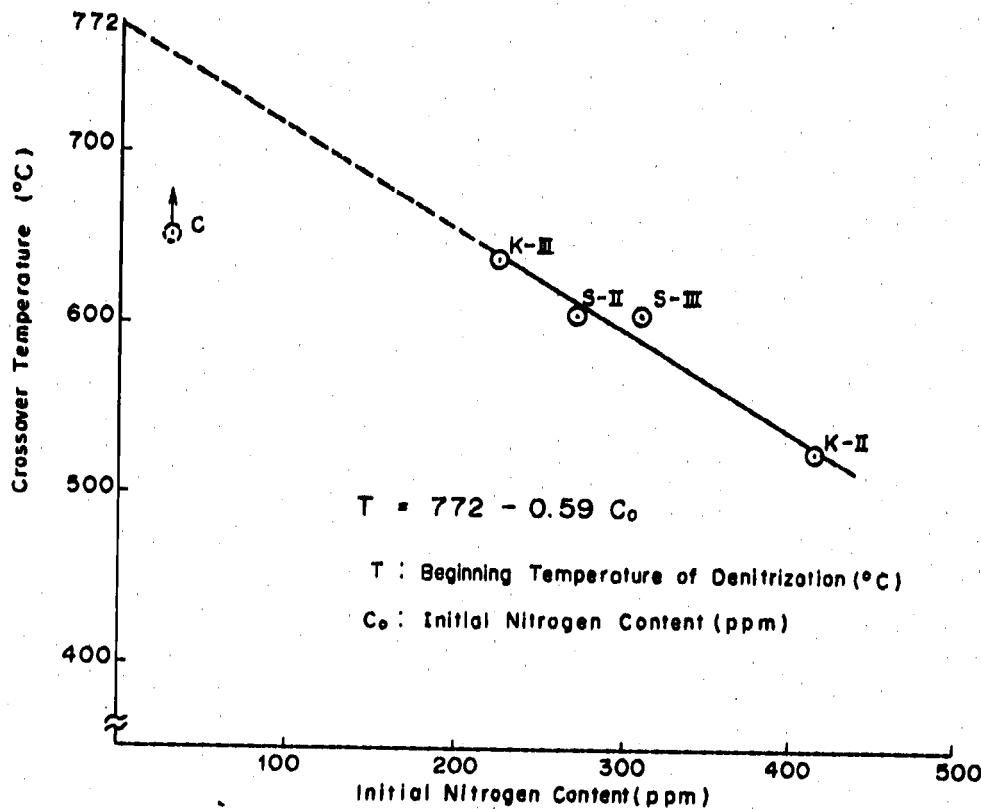


Fig. 30 Initial Nitrogen Content vs. Beginning Temperature of Denitration

### 3.11 浸漬材の室温における機械的性質の変化

ナトリウム腐食が被覆管の機械的性質に及ぼす影響を明かにするため室温でリング引張試験を行なった。

Fig.31はリング引張試験による応力-歪曲線を示す。図には前報の結果も示す。歪は前報と同様に試験前の被覆管外周をゲージ長さにし伸びとゲージ長さの比をとり、 $\text{Strain (\%)} = 2 \cdot \Delta l \cdot 100 / 2\pi r$  ( $\Delta l$ : 被覆管片側の伸び,  $2\pi r$ : 試験前の被覆管外周) より求めた。Fig.32はFig.31より求めた機械的性質を温度に対しプロットしたものである。本試験では550°Cまでは引張強さが試験前より低下し、650°Cで増加している。特にS-II材とK-III材の650°Cの引張強さが著しく増加している。前報の650°C, 2000時間までの試験結果では逆に引張強さが低下している。これは $\alpha$ 相生成に2000時間以上を要することをあらわす。

一方、伸びは試験後増加する傾向が強いが、K-IIIは650°Cで試験前より低下している。浸漬温度に対する試験前後の引張強さおよび伸びの変化が最も小さいのはC材である。

このような機械的性質に影響を与える因子としてはナトリウム腐食および温度の効果が考えられる。温度の効果には回復、軟化、炭化物あるいは金属間化合物の析出があるが、これらの効果はナトリウム腐食による成分または組織変化の影響もうけると考えられる。ナトリウム腐食が材料の機械的性質に及ぼす効果については4.4項に述べる。

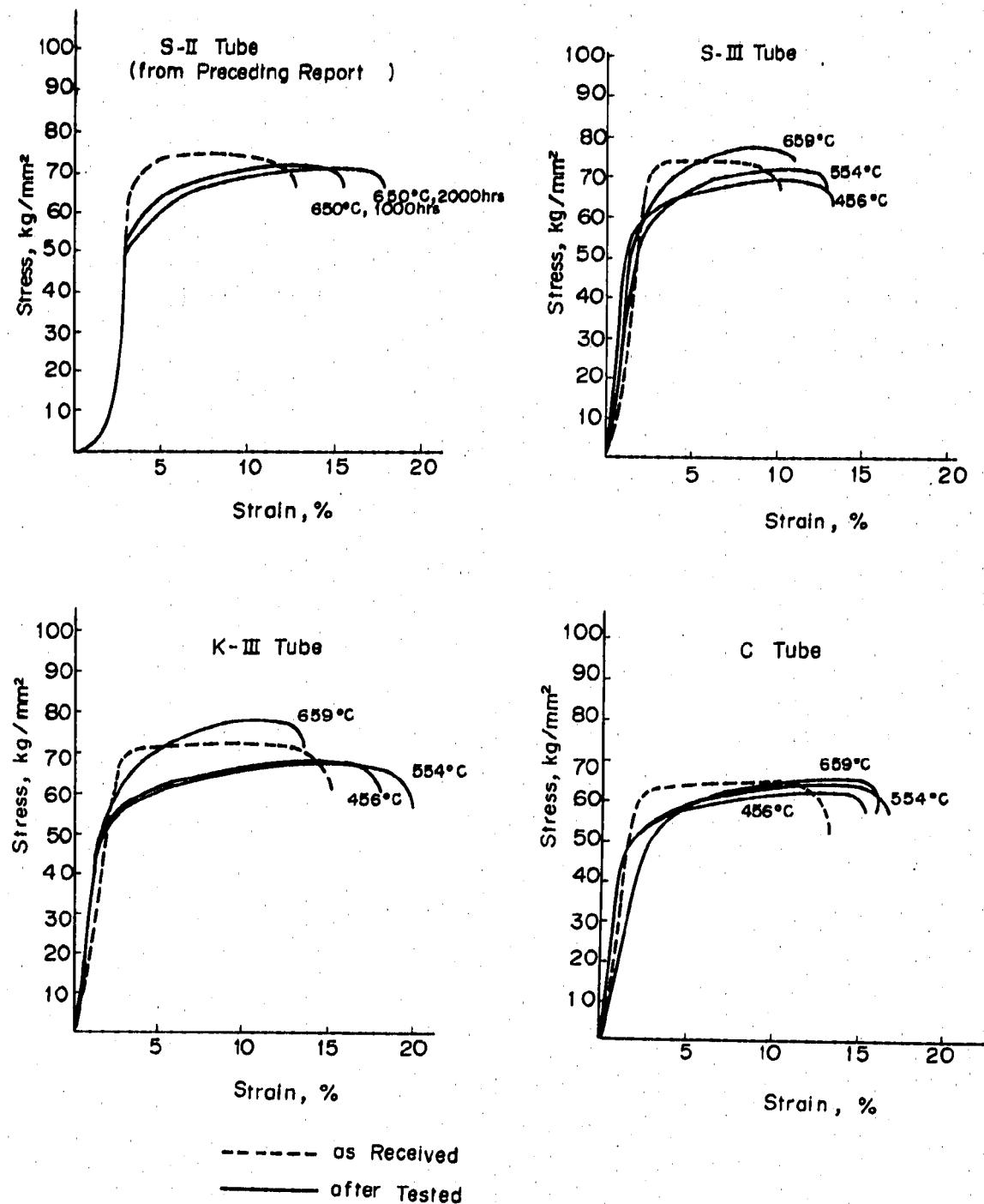


Fig. 31 Stress-Strain Curves of Different Cladding Tubes after Ring Tensile Test

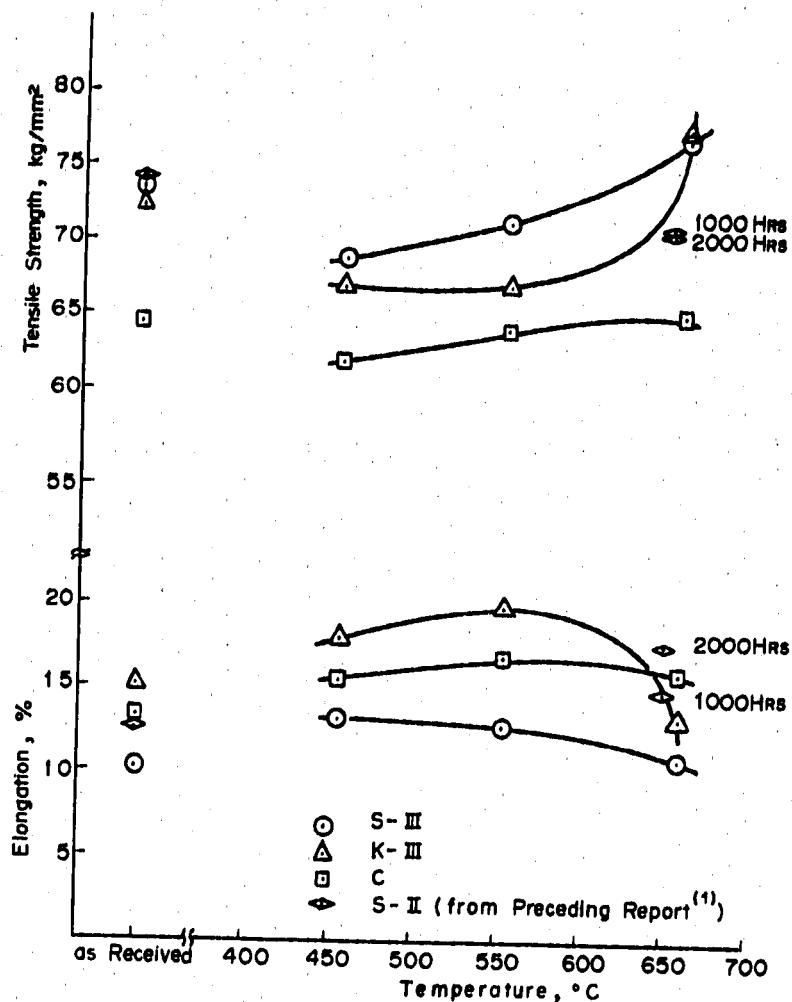


Fig. 32 Changes of Mechanical Properties due to Ring Tensile Test of Different Cladding Tubes

### 3.12 融着した試験片の引張試験

ナトリウム浸漬中にFig. 1 に示した重歴測定用の質量移行試験片の一部が 630 °C以上で互いに融着した。融着は被覆管を 50 mm の長さに輪切りにした切断面で起ったが、質量移行試験片のうち K-Ⅲ材の一部だけが融着し、それ以外の被覆管は融着しなかった。ただしこの場合の融着とはナトリウム処理後の室温大気中において 50 mm 被覆管が互いに凝着しているものをさしており、ナトリウム浸漬中あるいはナトリウム処理前の状態ではない。いずれにしても融着は高温のナトリウム浸漬中に起ったと考えられる。

Photo. 16 は引張試験用治具を融着試験片に溶接付けした状態を示す。短かい方は 50 mm 被覆管 2 本が融着したものであり、長い方は 50 mm 被覆管 3 本が融着したものである。

Table. 9 は融着した試験片の室温における引張破断力およびみかけの融着強さを示す。破断はすべて融着面で起り伸びは全くなかった。また融着力は高温になるほど増加する傾向がみられる。融着力は温度のほか、接触面にかけられる荷重の影響をうけるが、本試験では Fig. 1 (B) に示す端栓を被覆管両端よ

Table 9 Adhesive Force of Self-Welded Specimens

Self-Welded Cladding Tube No.		Test Temperature, °C	Adhesive Force, kg	Adhesive Strength, kg/mm <sup>2</sup>
No.32 (K-34)	vs.	No.33 (K-35)	636	75
No.33 (O-34)	vs.	No.34 (P-13)	643	105
No.35 (P-14)	vs.	No.36 (P-15)	656	76
No.35 (P-2)	vs.	No.36 (P-3)	656	129
				19.8

Apparent Contact Area: 6.5 mm<sup>2</sup>

り中子にねじ止めすることにより被覆管接触面に荷重がかかる。このねじ止めは素手で軽くしめただけであること、中子の材質が被覆管と同じSUS 316であるから被覆管と中子の熱膨張差がないこと、また被覆管と中子には片側25 μmのギャップがあることなどの理由から接触荷重は1kg以下と考えられる。みかけの接触面積で割った接触面圧は0.15kg/mm<sup>2</sup>以下となり著しく小さい。

Photo.17は引張破断したあとの融着面である。白い部分が融着した部分で、みかけの接触面より著しく小さな面で融着が起っているのがわかる。したがって荷重が小さくても真実接触面の面圧は高くなり融着が生じたと考えられる。

Photo.18は融着した被覆管の断面組織である。融着がみかけの接触面のごく一部で起っていることおよび結晶粒が微細化し再結晶が起っているのがわかる。

溝淵ら（ナトリウム技開室）はナトリウム中の自己融着試験によりSUS 316同志は自己融着性が著しいことを明かにしている。  
(50)

## 4. 考 察

### 4.1 被覆管表面層のナトリウム腐食（組成元素の溶出および沈着）

ナトリウム腐食により材料表面で組成元素が溶出または沈着する。その速度、量および位臵に影響を与える環境因子としては浸漬温度、温度分布、時間、純度、流速（レイノルズ数）、試験片の位置、下流効果、ループの使用履歴および材料因子として組成、冷間加工度などがある。この他、燃料被覆管の腐食を考える場合には通常の試験片と異なり大きな熱流束の影響がある。

組成元素の溶出または沈着により生ずる問題点としては次のようなことが考えられる。

- (1) 材料強度の低下
- (2) 伝熱管の熱伝達特性の変化
- (3) 放射性腐食生成物の分散
- (4) ナトリウム流動圧力損失の増加
- (5) 材料界面での諸特性の変化（摩擦、摩耗、自己融着、ぬれなど）
- (6) 電磁流量計出力の変化

このような重大な影響を与えるナトリウム腐食過程を解明するため、近年沈着物の組成および構造の同定に関する研究が多く行なわれている。**Appendix** に諸外国の研究例を示した。

金属元素の溶出による肉厚減少および変質層生成によって材料強度が低下するが、その影響は特に薄肉被覆管で著しくなる。詳細は後述の 4.4 項に示した。

沈着物は外観上多孔質で、Thorley (REML) らの報告によると沈着物の密度は母材の  $1/3$  であるが、低温部の沈着層の厚さは数  $100 \mu\text{m}$  にも達している。また **Appendix** に示したように沈着物が酸化物の形態をなしているとの報告が多くあり、本試験でも Fig.13 と Fig.28 より明かに沈着領域と酸素增加域がよく一致している。ただし Fig.28 は Na処理による酸化の影響も考慮しなければいけない。以上のことより沈着物は母材より熱伝達性が悪いと考えられる。

この点に関する薄肉被覆管での沈着物の影響を次に考えてみる。Fig.13 によると温度上昇部にある被覆管において約  $520 \sim 630^\circ\text{C}$  で沈着が生じた。沈着速度は max. 約  $0.2 \mu\text{m/year}$  と低いが、これはナトリウム流速が  $9.4 \text{ mm/sec}$  と著しく低いため、実機で考えられる数  $\text{m/sec}$  のナトリウム流速では沈着量が増加することが予想される。しかし Fig.33 に示した Thorley (REML) らによる実機炉心を模擬した大型ループの結果によると、 $2.2 \text{ m/sec}$  の流速においても max. 約  $0.4 \mu\text{m}/28 \text{ weeks}$  の沈着しか生じていない。これらのデータからみるかぎり  $350 \text{ m}\mu$  肉厚の被覆管の熱伝達に対する沈着層の影響は小さいと考えられる。

しかし温度下降部である中間熱交換器伝熱管では約  $1.2 \text{ mm}$  の肉厚に対し数  $100 \mu\text{m/year}$  の沈着が考えられ、伝熱管の熱伝達特性に対する沈着の影響は大きいと考えられる。Fig.34 は Thorley (REML) らが実機中間熱交換器を模擬した大型ループにより求めた結果で、約  $400 \text{ m}\mu/28 \text{ weeks}$  の沈着が伝熱管に均一に観察されている。また松本ら（ナトリウム流伝試験室）はナトリウム流动

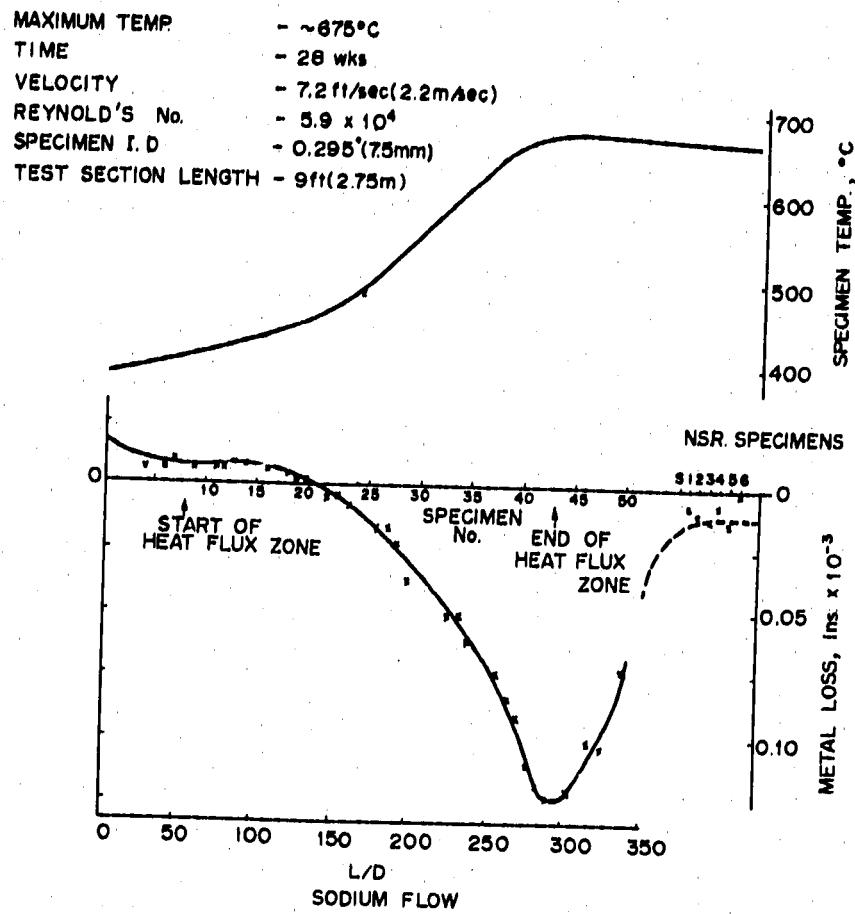


Fig. 33 Corrosion Rates & Temperature Distribution for Core & N.S.R. Specimens in Core Test Station No. 2 (by A.W. Thorley, et al.<sup>(8)</sup>)

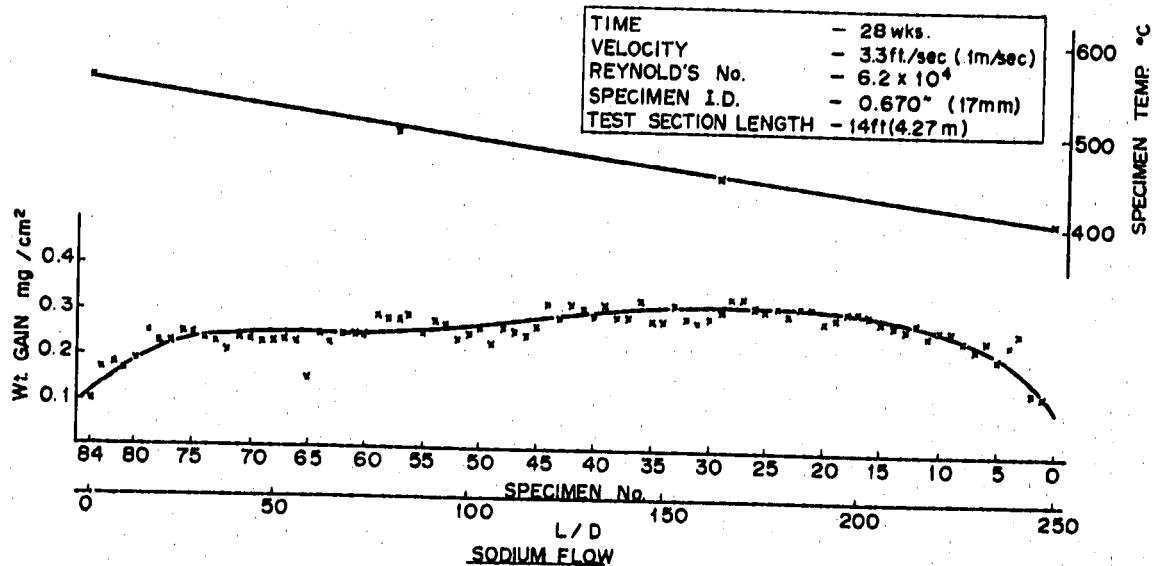


Fig. 34 Weight Gain and Temperature Profiles for I.H.X. Specimens (by A.W. Thorley, et al.<sup>(8)</sup>)

依然試験装置の再生熱交換器の熱伝達係数が600時間に対し9,000時間後は0~5%低下したことを見ている。14,500時間後は9,000時間とくらべ経時変化はなかった。沈着物の付着力は弱くナトリウム流動により剥離しうるので、沈着層の厚みには飽和値があると考えられ、熱伝達特性の変化にも飽和値があるだろう。

<sup>(10)</sup> Claxton ら(Harwell)は(1)式に示す Maxwell の式より沈着物の熱伝導率を求めている。

$$k_{\text{eff}} = k_f \frac{1 - (1 - a \cdot k_p / k_f) b}{1 + (a - 1) b} \quad \dots \dots \dots \quad (1) \text{式}$$

ここで  $k_f$ : ナトリウムの熱伝導率

$k_p$ : 沈着層の熱伝導率

$a : 3k_f / (2k_f + k_p)$

$b : 1 - \epsilon$ ,  $\epsilon$ : 気孔率

40 μm厚さの沈着物の気孔率が40%の時、沈着層による温度ドロップは0.5°C以下: 気孔率0%の時、4°Cと報告している。

炉心で生成される放射性腐食生成物は一次系を移動し IHX, ポンプ, コールドトラップそして配管などに沈着することが考えられる。Erdman (BNL) <sup>(11)</sup> は FFTF の腐食生成物の放射能解析に関する HEDL および GE のデータをもとに、1000 MW(e) LMFBR の腐食による生成放射能量とその分布について検討している。腐食量および沈着形態について正確な情報がまだ得られないで誤差が大きいと考えられるが、Table.10とTable.11に生成する放射能とそれが各種機器に沈着する割合を示す。腐食により多量の放射性物質が一次系に分散し、各種機器の管理維持が放射線被爆の点より難かしくなるのがわかる。

Table 10 Estimates of Activated Corrosion Products in the Primary System of a 1000-MW(e) LMFBR after 30 Years of Operation (by C. A. Erdman, et al. <sup>(11)</sup>)

Isotope	Formation reaction	$T_{1/2}$	Contribution to the primary system activity, Ci				
			Core	Axial blanket	Gas plenum	Radial blanket	Total primary system activity
<sup>60</sup> Co	n,γ n,p	5.24 years	1,400† 1,000	9300†	6600†	2200†	20,000
<sup>58</sup> Co	n,p	71 days	20,000	2800	300	400	23,000
<sup>54</sup> Mn	n,p	313 days	16,000	2400	—	300	19,000
<sup>55</sup> Fe	n,γ	2.4 years	26,000	†	†	†	>26,000
<sup>59</sup> Fe	n,γ	45 days	300	500	300	—	1,000
<sup>51</sup> Cr	n,γ	28 days	2,500	2800	1800	—	7,000
<sup>182</sup> Ta	n,α	—	200	—	—	—	—
	n,γ	115 days	800	3200	2400	—	6,000§

\* All values are based on stoichiometric corrosion, assuming 316 stainless steel.

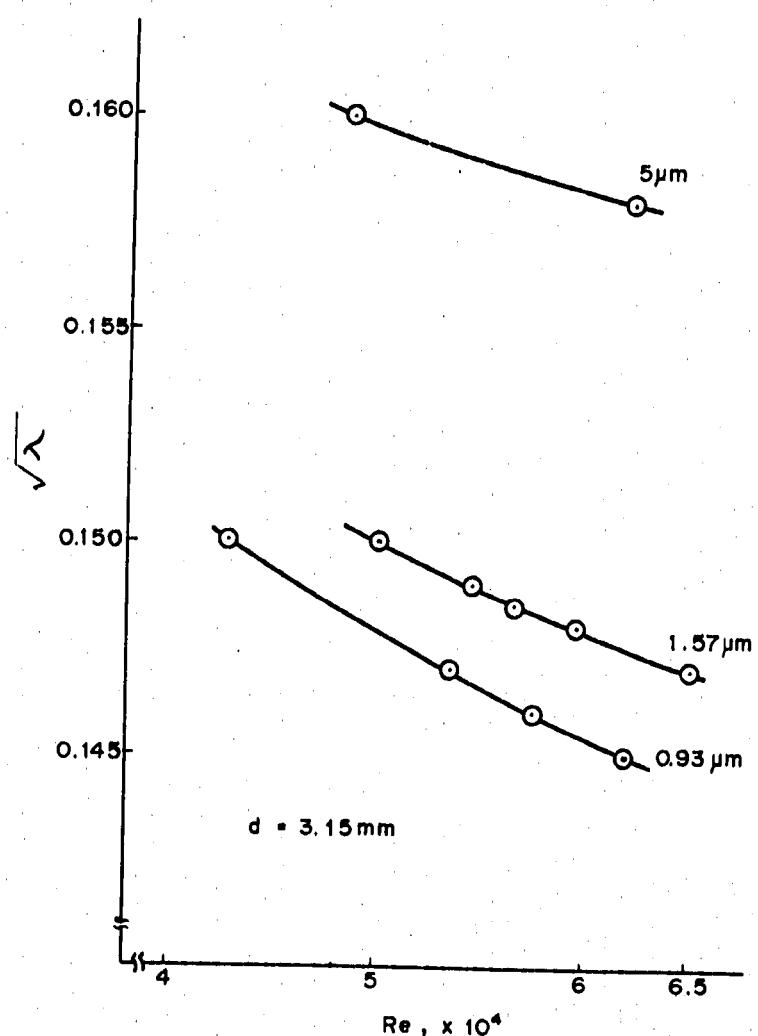
† Based on only 0.02 wt.% cobalt in stainless steel. (HEDL assumed 0.02%; GE assumed 0.1%).

‡ Cross sections were unavailable for the soft spectra in these regions. It is expected that the <sup>55</sup>Fe generation from the (n,γ) reaction would be higher outside of the core than inside. The calculation was not pursued further, however, because <sup>55</sup>Fe decays only by electron capture so that the <sup>55</sup>Fe activity is of little importance.

§ The assumption of stoichiometric corrosion is believed by HEDL to be particularly poor here. (HEDL assumed only 1% stoichiometric corrosion.)

**Table 11 Fraction of Isotopes Deposited in Primary System Components (by C. A. Erdman, et al. (11))**

Component	$^{60}\text{Co}$		$^{58}\text{Co}$		$^{54}\text{Mn}$		$^{51}\text{Cr}, ^{59}\text{Fe}, ^{182}\text{Ta}$	
	HEDL	GE	HEDL	GE	HEDL	GE	HEDL	
Vessel	0.31		0.51		0.06			0.108
Hot-leg piping, vessel to pump	0.249		0.20		0.12			0.109
Pump	0.12		0.08		0.08			0.030
Hot-leg piping pump to intermediate heat exchanger (IHX)	0.04		0.03		0.01			0.017
IHX	Top half	0.114		0.114		0.105		
	Bottom half	0.258	0.280	0.280	0.42	0.333		0.684
Cold-leg piping	0.02	0.145	0.01	0.145	0.25	0.250		0.046
Cold trap	0.003	0.300	0.003	0.300	0.03	0.035		0.005
Primary tank, inlet		0.034		0.034		0.059		
Bottom shield		0.127		0.127		0.218		



**Fig. 35 Relation between  $Re$  and  $\sqrt{\lambda}$**

また W. F. Brehm ら (Battelle) の実験によると沈着した放射性核種は構造材内に拡散することがわかつており、放射能除染は簡単にはいかない。そこで腐食生成物の生成過程および沈着メカニズムを解明することにより腐食物質を行効にトラップする方法の開発が望まれる。関口ら (ナトリウム技術開発室) により放射化材料試験ループを使用し、これらの研究開発が行なわれている。<sup>(16)</sup>

筆者らは前報で表面あらさとナトリウム流動圧力損失との関係を Colebrook & White の式で求めた。<sup>(17)</sup>

$$\frac{1}{\lambda} = -2 \log \frac{e/d}{3.17} + \frac{2.51}{Re \cdot A} \quad \text{..... (2)式} \quad \text{<sup>(2)</sup>式}$$

Fig.35 と Fig.36 は実機燃料集合体で予想される Re 数、表面あらさ e および抗力係数  $\lambda$  の関係を示す。ただし等価直径 d は JOYO の値 3.15 mm を使用した。これらの図によると JOYO での Re 数約  $5.5 \times 10^4$ において表面あらさが  $0.9 \mu\text{m}$  から  $5 \mu\text{m}$  に増加すると圧力損失は 17 % 増大することになる。ナトリウム流動伝熱試験室では燃料集合体および再生熱交換器の圧力損失測定が行なわれ経時増加が観察されている。また FFTF 用燃料集合体でも同様なことが認められている。<sup>(18)</sup> 姫野ら

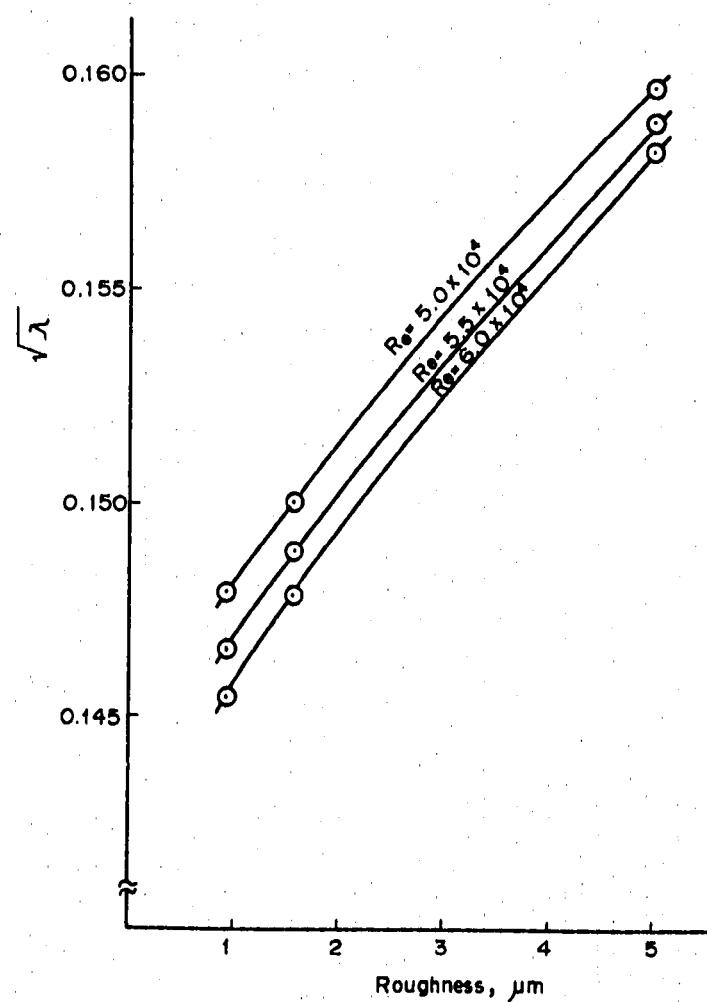


Fig. 36 Relation between Roughness and  $\sqrt{\lambda}$

(ナトリウム流体)は圧力損失上昇率がナトリウム腐食量  $R_n = C_{ox} \cdot e^{-E/RT} \cdot R_e^{0.8}$  (ここで  $C_{ox}$ : 酸素濃度,  $E$ : 活性化エネルギー,  $R_e$ : レイノルズ数)に比例することおよびナトリウム腐食による表面あらさ変化には飽和値があることを明かにしている。

摩擦、摩耗および自己触着は材料界面現象であり、材料の表面状態の影響をうける。ナトリウム腐食による組成元素の溶出により生成する $\alpha$ 相は $\gamma$ 相より金属元素の拡散係数が高いので接触材料間で凝着しやすくなり、またナトリウム腐食による沈着により材料表面の組成および形態が変わる。SUS 304 および SUS 316 は低温部で沈着層ができるることはよく知られている。

Whitlow ら (WH) は Ni 基および Co 基合金のナトリウム中腐食試験を行ない 20 ~ 25 ppm 酸素で高温部のステライト Na<sub>6</sub>, インコネル 600 およびインコネル 606 表面上に Fe rich な沈着物を観察した。また Roy ら (GE) は Fig. 37 に示したように高温の純 Fe 表面に Cr, Ni の沈着を観察した。これらはループ構成材の SUS 304 および SUS 316 と試験片の組成が著しく異なり、化学的質量移行が生じたためである。Devan (ORNL) は Fig. 38 に示すように Ni 基合金の方が SUS より沈着量が多いことを明かにしている。

ナトリウム中で摺動・接触する機器材料には Ni 基合金、Co 基合金あるいはカーバイト材を使用し性能および耐久性の向上をめざしているが上述のように材料表面の組成および形態が変化し耐摩擦、摩耗、自己触着性が損なわれる可能性がある。そこで筆者らは Ni 基合金、Co 基合金、カーバイト材

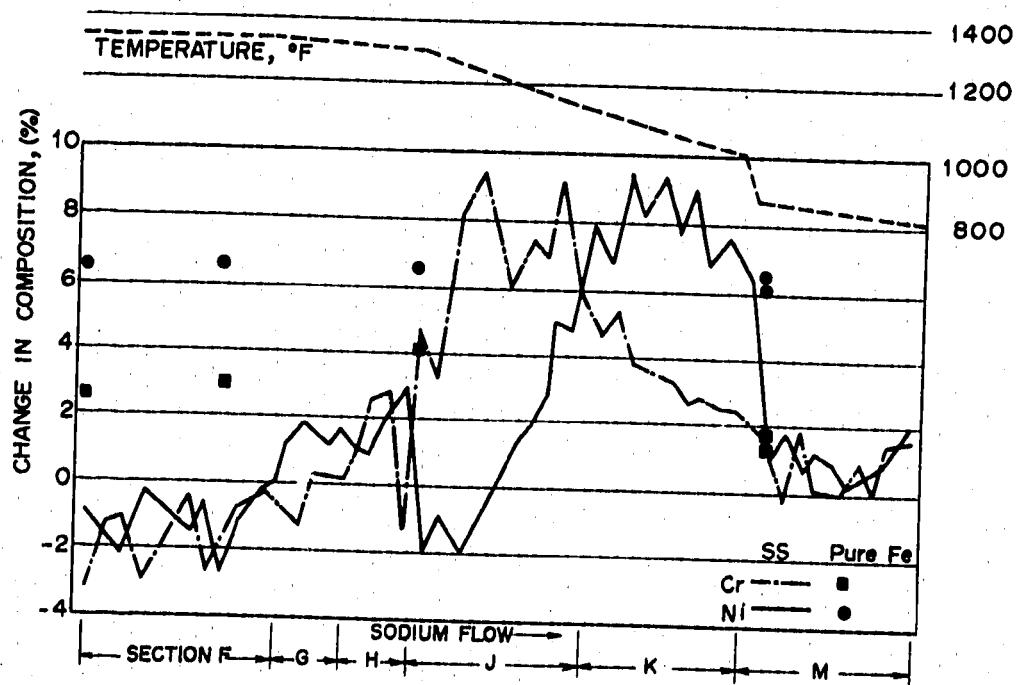


Fig. 37 Movement of Alloy Constituents in a Test Loop (by P. Roy, et al. (20))

(注) 原子炉で問題となる個所として、炉心ラッパー管パッド、グリッドスペーサー、炉心支持板、炉心上部の各種駆動部（アルゴン霧閉気も含む）、ポンプベアリング、バルブ弁座などが考えられる。

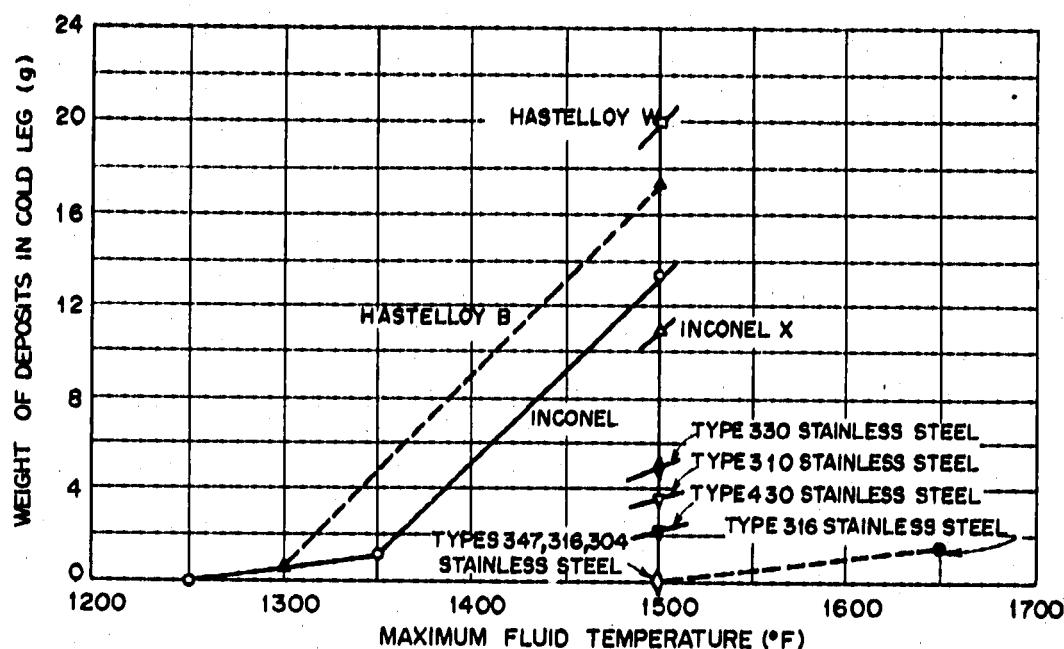


Fig. 38 Comparative Mass Transfer rates of Nickel-Base Alloys and Stainless Steels in Sodium-Operating Conditions:  $\Delta T$ , 300°F; Flow, 2.5 gal/min; Test Time, 1000h (by J.H. Devan<sup>(21)</sup>)

などのナトリウム腐食試験およびナトリウム腐食させた後の摩擦および自己触着試験を行なう計測である。

土屋ら（小型蒸気発生器試験室）<sup>(22)</sup>は電磁流量計の出力が最大 30 %低下したと報告している。解体検査の結果流動管内面に Fe 約 50 %を含む沈着物があり、この沈着物を除去すると出力が回復することから沈着物が出力低下の主原因であるとしている。この沈着物はナトリウム腐食により生じたものであり、Fe 量が多いのはループ構成材の 2 1/4 Cr - 1 Mo 鋼から流動管 SUS 304 への化学的質量移行のためと考えられる。

Fig. 13 に示したように本試験で得られた腐食量は温度上昇とともに沈着量が増加し、約 600 °Cをこえると沈着量が減少はじめ、ついに約 630 °Cで重積減となる。この傾向は Photo. 4 ~ Photo. 9 に示した実体顕微鏡および SEM による外観とよく一致している。この理由として次のことが考えられる。ナトリウム中に溶出した腐食生成物はコールドレグとホットレグの境界において過飽和状態<sup>(23)</sup> (8) にありホットレグの入口付近でも沈着が生ずる。Roy ら (GE) および Thorley (REML) らの報告では腐食生成物は互いに凝集し数 μm の Particulate としてナトリウム流内に存在するとしている。また温度上昇による Re 数の増大および物質拡散速度（運動量）の増大により物質移動量が増加する。よって、温度上昇部で沈着量の増加が生ずることになる。

Claxton ら (Harwell)<sup>(10)</sup> はナトリウム腐食の沈着過程について次のような考え方を示している。沈着過程は(3)式のように粒子が材料壁に到達し沈着物を形成する機構と材料壁からナトリウム中へもどる機構との差として考えられる。後者はスポーリング、エロージョンなどの機構と化学作用に細

分できるかもしれない。

$$R = \phi_D - \phi_B \quad \dots \dots \dots \quad (3)式$$

ここで  $R$  : 沈着物の生成速度

$\phi_D$  : 粒子の沈着速度

$\phi_B$  : 粒子のスポーリング速度 である。

試験開始とともに沈着層は増加し終に平衡に達するが、その厚みは流速、粒子径、管径、熱流束などに依存する。また粒子径により4つの領域にわけた。すなわち粒子径の小さい方から順に、

- (a) 分子状溶解物の沈着領域
- (b) 分子状溶解物と同様に移行するが、拡散係数がより小さい細粒
- (c) 慣性が問題となるほど充分大きな粒子で、乱流領域での渦流によって生ずる充分な放射状モーメントにより管壁近傍の層流領域に入り込む場合にのみ沈着する。
- (d) 移動距離が管径と同じ桁になるさらに大きな粒子で、乱流による変動に対する応答がにくくなり、移行量が抑えられる。

粒子径がさらに大きくなると移行量は減少はじめる。

本試験ではすべて層流領域であるため(c)および(d)は適用できない。

Fig.39に650°CでのS-II材の腐食量とUKAEAのデータを示す。<sup>(1),(4)</sup> 前報では650°C、1000時間、コールドトラップ200°CでのS-II材の腐食量が約10~40 μm/yearであったのに本試験のS-II材が0.5 μm/yearと非常に低い。これは前報のRe数が $1.39 \times 10^4$ で乱流領域があったのに対し、本報では約450で全系が層流領域のため物質移動速度が遅いためである。Fig.33に示した実機サイズの試験では4704時間、Re数 $5.9 \times 10^4$ 、2.2 m/sec、コールドトラップ180°C、650°Cの条件で約3.5 μm/yearである。筆者らが650°C、コールドトラップ150°C、流速3 m/sec、5071時間の条件で試験したS-II材の腐食量は<sup>(25)</sup> 2.5 μm/yearで、前報のコールドトラップ150°Cにおける結果とほぼ同じ値を示している。

試験後の表面層の組成変化はFig.22およびFig.24~Fig.27より明らかに温度依存性がある。500°Cまではほとんど変化ないが600°Cの沈着領域でCrが増加し、FeとNiが相対的に減少している。またFig.26によるとCrとNaのピークが一致していることおよびFig.28より600°Cで表面酸素量が増加していることなどよりFig.13の重量增加は $Na_xCr_yO_2$ の沈着のためと考えられる。この沈着のためFig.20に示したように550°Cで表面のかたさが低下する。Appendixによると $Na_xCr_yO_2$ は $NaCrO_3$ の可能性が最も強い。しかしこれがNa中で生じたのかあるいはNa中試験後の諸処理中に生じたのかは明かでない。646°Cの溶出領域ではNiとMnが減少しているが、FeとCrの変化は大きくない。またMo、CoおよびSiの変化は600°Cおよび646°Cとも大きくない。646°Cで特徴的なことはCrとMoのピークが一致し、FeとNiがこれと逆転していることである。おそらくCr

(注) Thorleyら(REML)は沈着過程は境界層を介した移行ではなく沈着粒子の沈着壁への衝突と関係があるとしている。<sup>(8)</sup>

	Mark	Specimen	$O_2$ (ppm), CT Temp. ( $^{\circ}$ C)	Sodium Velocity (m/sec)	Exposure Time (hour)	Bibliography
Low-Purity Material Test Loop	▲	S-II (Welded)	~12, CT200 $^{\circ}$ C	2.6	953	(1)
	●	S-II	"	"	"	(1)
	×*	S-II	"	$9.4 \times 10^{-3}$	4728	Present Report
Medium-Purity Material Test Loop	△	S-II (Welded)	5, CT150 $^{\circ}$ C	6	904	(1)
	○	S-II	"	"	"	(1)
	×	S-II	"	3	5071	(25)
Hot Steel Test Loop	[]	S-II	CT200 $^{\circ}$ C	2.5	996	(4)
UKAEA	1	316SS Cladding Tube, et al.	~25	3~10		(24)
	2	"	~10	"		(24)
	3	"	<5	6~10		(24)
	4*	316SS Cladding Tube	CT180 $^{\circ}$ C	2.2	4704	(8)

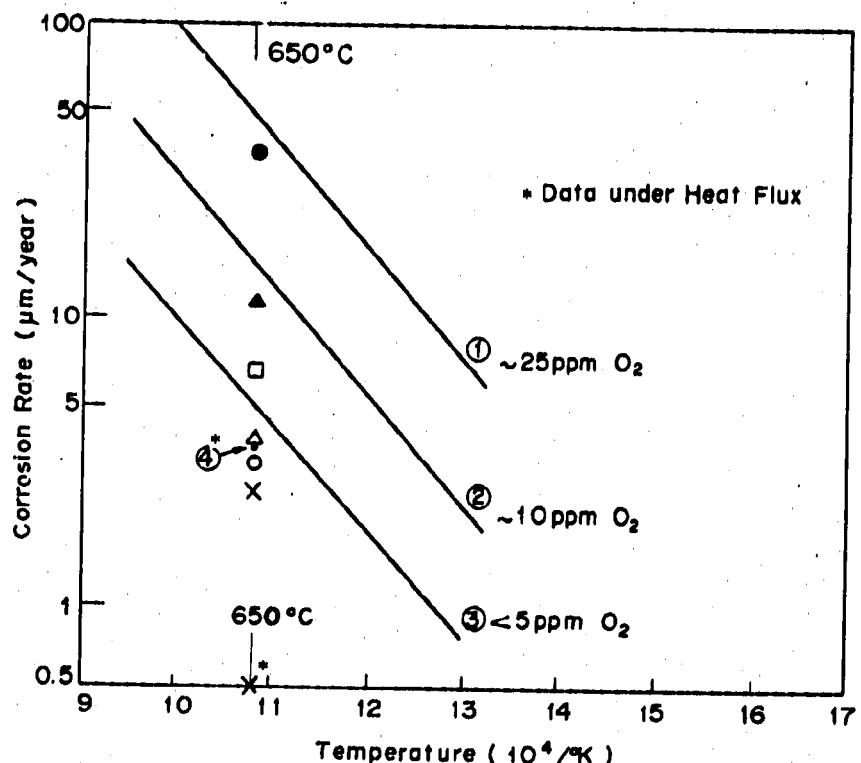


Fig. 39 Corrosion Rate of AISI 316 Cladding Tube

と Mo はカーバイト相に共存しているためと考えられる。高温になると XMA 強度の変動が大きくなるのは Table. 6 および Fig.14～Fig.18 に示したように表面あらさの変化が一因と考えられる。

Fe, Cr および Ni のうち、Fe と Cr は熱力学データより明かに低酸素量の Na 中でも安定な酸化物を作る。また Appendix によると Fe と Cr は Na との複合化合物を生成する可能性が強く、酸素含有 Na 中では Fe, Cr の溶解度が増大する。<sup>25)</sup> Fig. 40 は Singer ら (BNL) が求めた Fe の溶解度に対する酸素量の影響についてのデータである。これらのことから腐食量 (溶出量) は酸素濃度に依存することになる。一方 Ni は Na 中で安定な酸化物を生成せず、原子状溶解すると考えられる。姫野らは

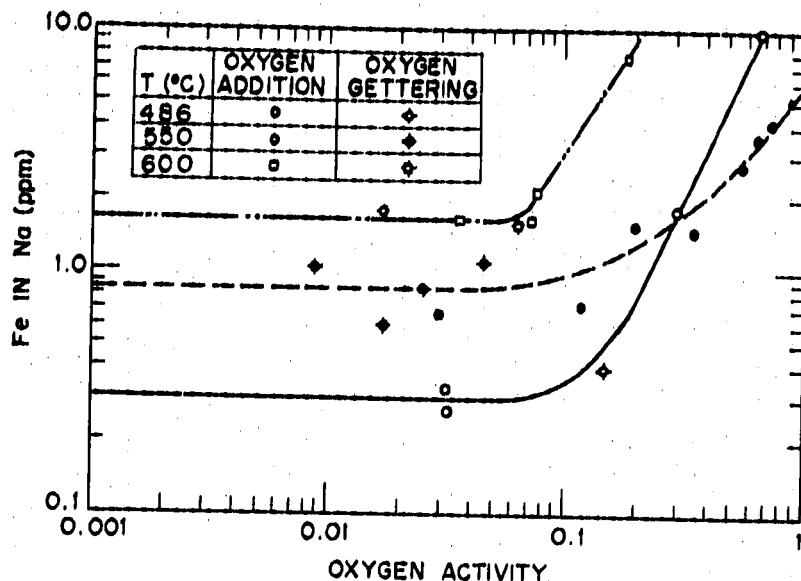


Fig. 40 Solubility of Iron in Sodium as a Function of Oxygen Activity (by R.M. Singer, et al. (26))

(ナトリウム流動伝熱室)<sup>18</sup> Na ループよりサンプリングした Na 中の Fe, Cr および Ni の化学分析値がそれぞれ溶解度の 1 ~  $10^3$  倍,  $10^4$  ~  $10^7$  倍および 1 ~ 10 倍と報告しており上述のことと一致する。

Cr と Ni の沈着位置に関しては、Roy ら (GE) の結果によると Fig.37 のように温度降下部でまず Cr が沈着をはじめ、つづいて Ni が沈着する。その理由について Singer ら (BNL)<sup>26</sup> は Cr の溶解度が Ni より温度依存性が強いためであるとしている。<sup>20</sup>

#### 4.2 組織変化

Fig. 22 の X 線回折の結果と Photo.10 ~ Photo.15 の金属組織写真より明かに S-II, S-III および K-II 材は 650 °C で  $\alpha$  相が析出するが、C 材ではこれがでていない。Fig.19 に示した 652 °C 複漬材のかたさが 548 °C でのかたさより C 材を除いて高くなっているのは  $\alpha$  相 ( $H_v = 900$ ) 析出のためと考えられる。また Photo.12 および Fig.19 より K-II 材も 650 °C で  $\alpha$  相が析出していると考えられる。<sup>(1)</sup> <sup>(4)</sup> Fig.41 および Fig.42 に示すように 650 °C, 1000 時間試験では  $\alpha$  相のピークはあらわれていない。この  $\alpha$  相の生成は保持時間の他冷間加工、ミクロ偏析およびその他の析出相の存在により促進される。特に Cr 炭化物は  $\alpha$  相析出の遷移段階となりうる。また C, N, Ni 塩の増加は  $\alpha$  相生成を抑制することが知られている。本試験における  $\alpha$  相生成の違いは Fig.28 に示したように 650 °C のナトリウム腐食による脱炭および脱窒が S-II, S-III, K-II および K-III 材で起り、C 材で起らなかつたことが一因と考えられる。

また Fig.41 および Fig.42 には  $\alpha$  相ピークが強くでているが、本試験では Fig.22 のようにまったく検出されなかつたかまたはほんのわずかであったのは前項でも示したように本試験の Re 数が著しく

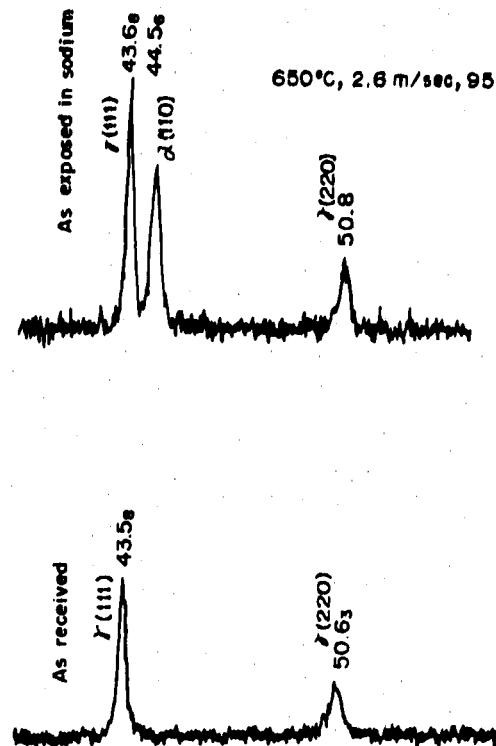


Fig. 41 Phase Shift Observation from fcc to bcc by X-Ray Diffraction (by S. Yuhara, et al. (1))

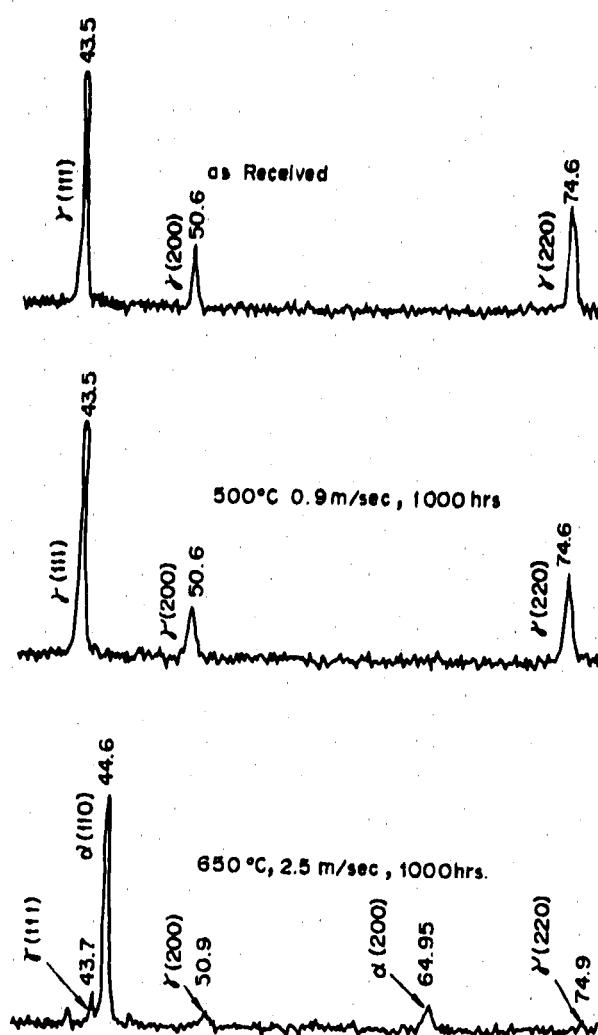


Fig. 42 Result of X-Ray Diffraction of Cladding Tube Surface (by A. Maruyama, et al. (4))

小さく物質移動量が少なかったためである。Fig. 13とFig. 22より明かに腐食量の大きいS-ⅡおよびS-Ⅲ材で $\alpha$ 相が生成している。

Photo.10～Photo.15をみると温変上昇とともに粒界、すべり線および双晶界面に炭化物が(Cr, Fe)<sub>23</sub>C<sub>6</sub>が析出するのがわかる。また652°Cになると粒内析出が生じ逆に粒界の炭化物は消失はじめている。しかしFig. 28に示した650°Cにおける脱炭の様子は組織写真から明白にはわからない。

またこれらの写真の特にナトリウム接液面に近い側の粒界にキャビティが生じているが、これはPhoto. 5～Photo. 9の652°Cナトリウム腐食面のS-ⅡM写真に見られるキャビティと同一のもので、袖原ら(ナトリウム技開室)<sup>(7)(27)</sup>によるクリープ試験でもみとめられている。クリープ試験の場合は応力の影響があるが、本試験は無負荷であり、キャビティがナトリウム接液面近傍に分布していることおよび金属元素の移行により生ずる変質層より深い位置に分布していることからC, N, B等の侵入型

元素のナトリウム腐食にもとづく移行がキャビティ生成の一原因と考えられる。また本試験ではS-II材およびC材はキャビティが少ないが、S-III材は厚み全体に分布していることから結晶粒微細化がキャビティ生成を促進しているかもしれない。

D.W. Sandusky ら (GE)<sup>28</sup> は SUS 304 および SUS 316 バイメタリックループを用いて最高 700 °C, 4 T = 298 °C, 3.05 ~ 5.18 m/sec, CT 138 °C の条件で 538 ~ 15726 時間ナトリウム浸漬した SUS 304, 316, 321, 347 およびインコロイ 800 の金相試験を行なった。700 °C で安定化材は 100 ~ 130 μm の深さまでキャビティが生成するが、Photo. 9 と Photo. 20 に示したように SUS 316 は表面近傍だけで内部には生成しない。 $\alpha$  相は 1768 時間で、 $\alpha$  相は 4838 時間で明白にみとめられる。この SUS 316 のキャビティ生成に関する本試験結果との違いは結晶粒径の著しい差のためかもしれない。

粒界を介する金属表面への元素の拡散は金属表面までの粒界の長さに依存するが、結晶粒が小さいほどこの粒界長さは短かくなり元素の拡散量が多くなる。

燃料被覆管は強度上昇および耐中性子照射損傷の観点から冷間加工されるが、長時間高温に保持されると再結晶により、転位密度の低下、ポリゴニゼーション、無歪結晶粒の核生成と結晶粒の成長などが起る。再結晶温度は加熱時間、組成、加工度などの影響をうける。Paxton ら (HEDL)<sup>29</sup> は FFTF で使用が予定されている 20 % 冷間加工 SUS 316 被覆管について C, N, P, S, B, Mn, Cu, Si, Mo, Co, Cr および Ni の 12 元素各々の組成をかえロックウェル B かたさ変化より 1 時間、100 時間、1000 時間の再結晶温度をもとめている。1 時間および 100 時間では、C, N, B, Mn, Cu, Si, Mo, Cr, Ni が、また 1000 時間では B, Cu, Si, Mo, Cr, Ni が再結晶温度に影響を与える。彼らは 1000 時間再結晶温度と組成との関係について(4)式を求めた。

$$\text{再結晶温度} (\text{°F}) = 545 + 55.9 (\% \text{Si}) + 36.8 (\% \text{Co}) + 13393 (\% \text{B}) + 91.5 (\% \text{Mo}) \cdots (4) \text{式}$$

元素間の相乗作用および 1000 時間以上の再結晶温度が求められていないという問題があるが、(4)式のうち Si, B は選択的にナトリウム中に溶出することが知られており、再結晶温度に対しナトリウム腐食が影響を与えると考えられる。

#### 4.3 炭素および窒素移行

Fig. 28 ~ Fig. 30 に示した被覆管のナトリウム中浸漬前後の炭素および窒素分析結果より次のことがわかった。炭素量および窒素量は C 材を除き高温になると減少し、脱炭開始温度に初期炭素量依存性がなくヒート依存性があることおよび脱窒開始温度に初期窒素量依存性があること、550 °C 附近に漫窓のピークがあるが漫炭ピークは生じないことおよびこれらの現象が腐食変質層だけでなく内部に及んでいることなどである。これらの理由としては、炭素は窒素よりも複雑な形で材料中に存在し、共存元素の影響をうけ活量が変化しやすく、また溶解度が小さいことが考えられる。

ナトリウム中の炭素移行について多くの報告がありその代表例を次に示す。

Wozadio ら (GE)<sup>30</sup> および Sandusky ら (GE)<sup>28</sup> は SUS 304 と SUS 316 のバイメタリックループを用い、800 ~ 1300 °F (一部 705 ~ 1150 °F), 17 ft/sec, コールドトラップ最低温度 270 ± 2 °F

の条件でSUS 304, 316, 321, 347およびインコロイ 800 のクラッドチューブ試験片について15,000時間までの炭素量をしらべた。SUS 304, 316 は高温ほど、また長時間ほど脱炭が著しくなる傾向があるが、SUS 321, 347 およびインコロイ 800 は逆に漫炭した。

<sup>31)</sup> Shieles ら (WH) はSUS 304 と SUS 316 のバイメタリックループを3000時間または10000時間、 $1025 \sim 1325^{\circ}\text{F}$ で運転した後、ループ各所の構成材の炭素分布を求めた。Fig. 43はループ全系の位置に対し構成材表面炭素量をプロットしたものである。炭素量は温度上昇とともに減少し最高温部で最低値 ( $1325^{\circ}\text{F}$ で 80 ppm) を示し温度降下とともに増加し一部で漫炭が生じている。また長時間ほど温度下降部での増加量が多くなっている。

<sup>32)</sup> Snyder ら (ANL) はSUS 316 の焼鈍材と 20 %冷間加工材の炭素移行プロファイルを10,000時間の 0.13 ppm 炭素含有ナトリウム中漫漬、 $400 \sim 800^{\circ}\text{C}$ の条件下で計算により求めた。漫炭と脱炭の境界温度 (Crossover Temperature) に明かな違いはみとめられなかったが、低温側での漫炭量が冷間加工材ほど多くなりまた脱炭によるオーステナイト、カーバイト 2 相からオーステナイト単相への遷移温度が冷間加工材ほど高くなかった。また彼らは実機の冷間加工した被覆管に予想される軸

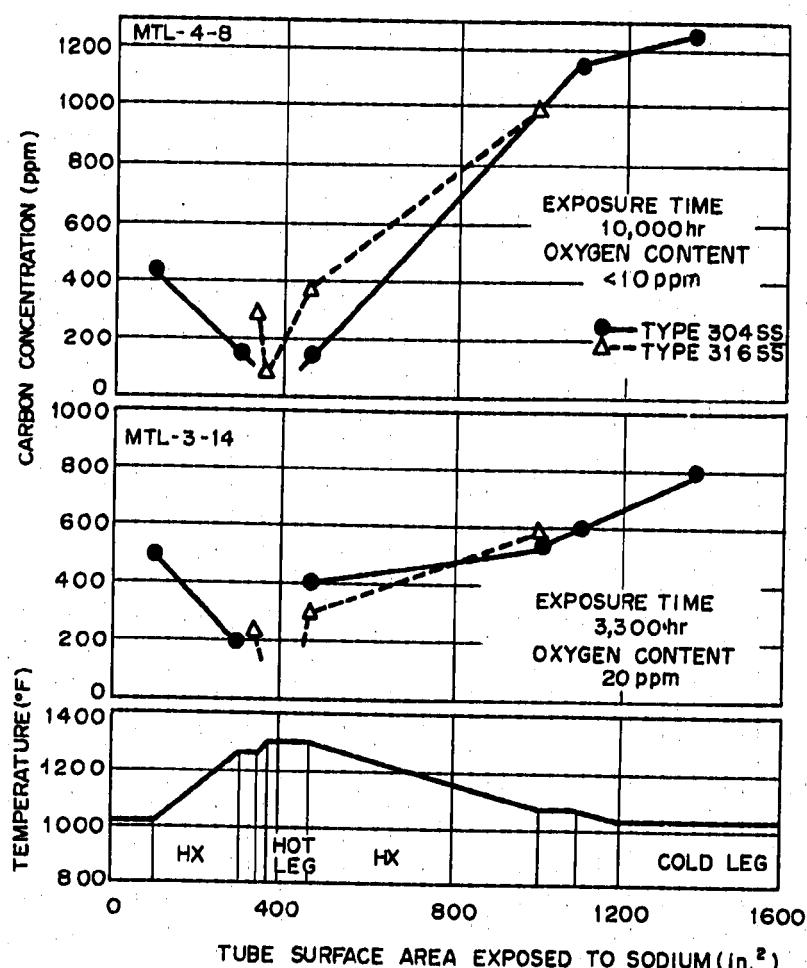


Fig. 43 Surface Carbon Distribution (MTL-3-14 and MTL-4-8) (by S.A. Shields, et al.(31))

一方熱度勾配の炭素移行に対する影響を計算により求めた。Fig. 44がその結果で、熱度上昇部の約半分までは浸炭が、高温部で脱炭が生じる。また脱浸炭量がNa中の炭素量に依存すること、長時間ほど脱浸炭量が多くなることがわかる。Fig. 45からは被覆管厚み方向の炭素移行が高温ほど炭素の拡散速度が増加するため、より内部にまで及ぶのがわかる。計算では被覆管の初期C量500 ppm, Na中初期C量0.05 ppmの時、脱浸炭の境界温度（Crossover Temperature）が615 °Cである。

ナトリウム枝開窓で行なわれているS-II材およびS-III材のナトリウム中クリープ試験結果では<sup>(7),(27),(33)</sup> 650 °C～700 °Cの間で脱炭が生じている。Fig. 28をみると本試験ではS-II材およびS-III材の脱炭はクリープ試験の場合より低く600～650 °Cで起っているが、この主原因はナトリウム中の浸漬時間がクリープ試験の方が短かく、Fig. 45に示すように浸漬時間が短かいと炭素移行が全肉厚に及ぶためにはナトリウムがより高温の必要があるためと考えられる。

Forceがステンレス鋼中の炭素活性とナトリウム中の炭素活性との差に起因することからナトリウム中の炭素活性にも脱炭開始温度は左右される。したがって同一材料を異なる試験部あるいはループで試験する時、試験条件が全く同じであってもループ履歴、ループ形状、試験部の位置、形状、炭素源などの違いから脱炭開始温度に差が生ずる可能性がある。ナトリウム中の炭素挙動について

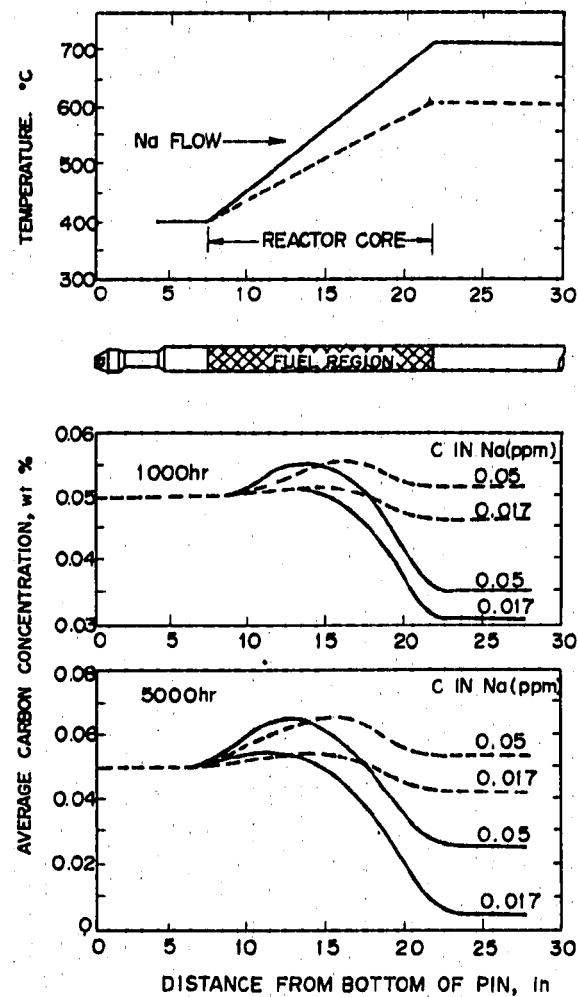


Fig. 44  
Relationship between the Axial Temperature Profile for the Fuel Pin and the Average Carbon Content of the 15-Mil Wall 20 % Cold-Worked Type 316 Stainless Steel Cladding after 1000-and 5000-hr Exposure to Sodium Containing 0.017 and 0.05 ppm Carbon (by R.B. Snyder, et al. (32))

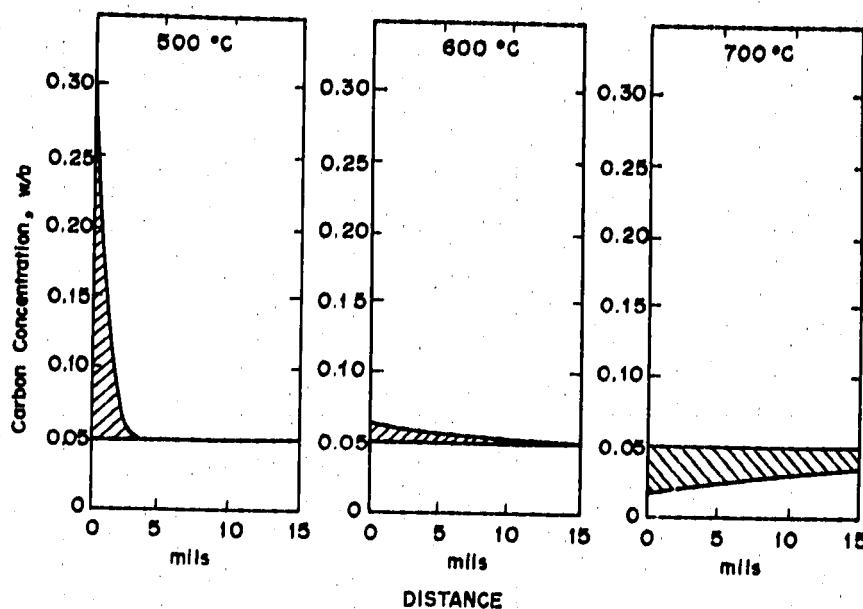


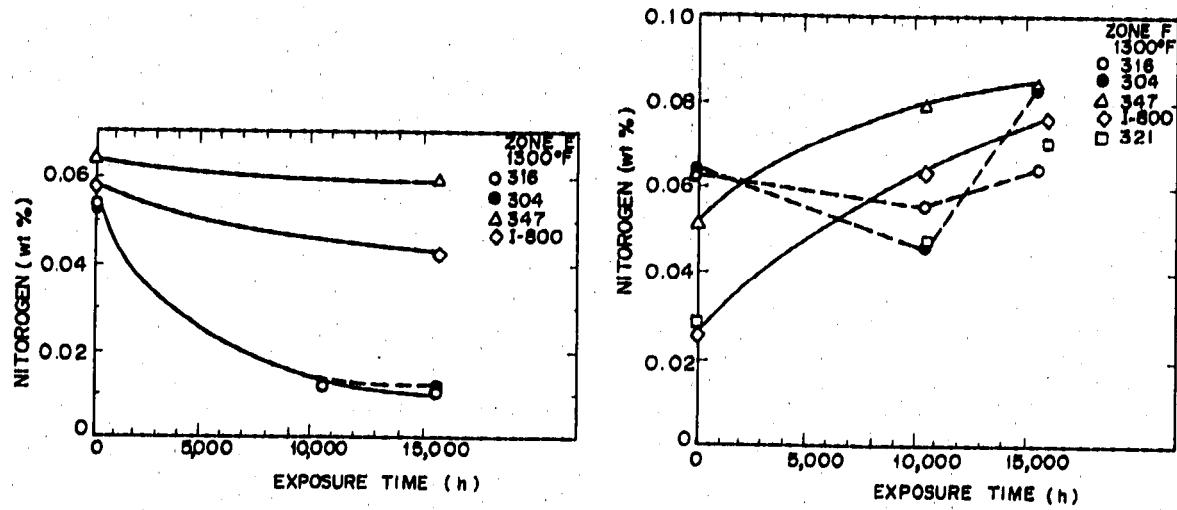
Fig. 45 Carbon Concentration-Distance Profiles across the 20 % Cold-Worked Type 316 Stainless Steel Cladding Wall at 500, 600 and 700°C after 5000-hr Exposure to Sodium Containing 0.05 ppm Carbon (by R.B. Snyder, et al.(32))

はいまだ充分な知見が得られず、ナトリウム技開室で研究がはじめられたばかりである。諸外国の研究状況については舟田（ナトリウム技開室）の調査報告がある。ステンレス鋼中の炭素活量については4.4項に述べた。

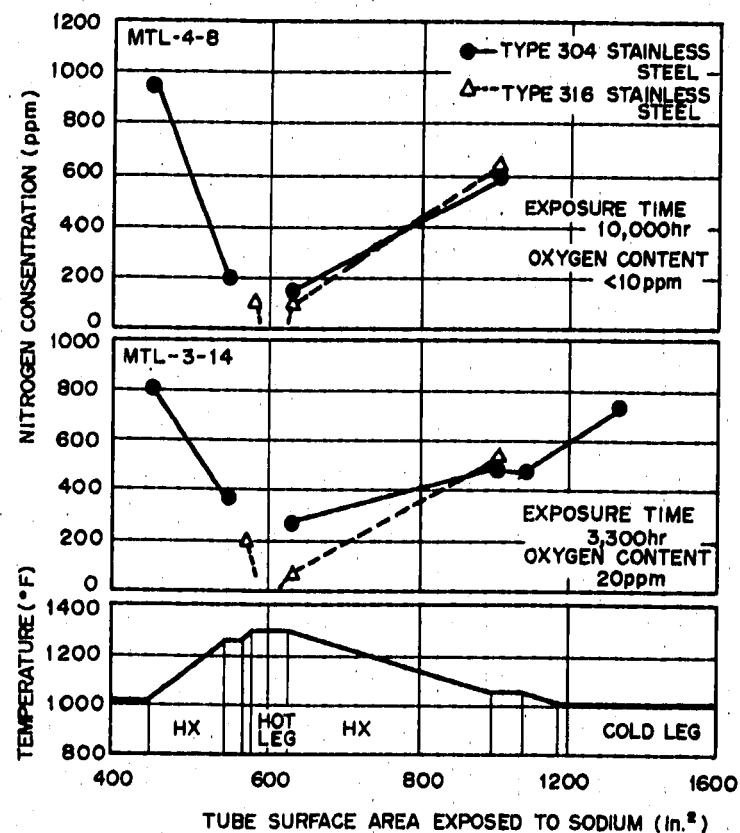
次にナトリウム中の窒素移行についての研究例を示す。Wozadlo ら (GE) <sup>(30)</sup> はSUS 304とSUS 316のバイメタリックループを用いて、800～1300°F（一部705～1150°F），17 ft/sec，コールドトラップ最低温度270±2°Fの条件でSUS 304, 316, 321, 347およびインコロイ800のクラッドチューブ試験片について15,000時間までの窒素移行量をしらべた。加熱器出口の1300°Fの最高温部 (ZONE E) ではすべての材料が脱窒し、特にSUS 304と316が著しい。最高温部が1150°Fの場合でもSUS 316は脱窒した。より下流側 (ZONE F) になるとSUS 321, 347およびインコロイ800の安定化材は1300°Fで浸窒し、SUS 304と316は1150°Fでは浸窒するが1300°Fでは試験時期により脱窒または浸窒した。Fig. 46に1300°Fの窒素量と浸漬時間との関係を示した。

Shiels ら (WH) <sup>(31)</sup> は2基のSUS 304とSUS 316のバイメタリックループを3000時間または10,000時間、1025～1325°Fで運転した後ループ各所より試料採取し、ナトリウム接液面より旋盤で削りながら厚み方向の窒素量の分布を求めた。Fig. 47は試験ループ全系の位置に対しループ構成材表面の窒素量をプロットしたものである。窒素量は温度上昇とともに減少、温度降下とともに増加、最高温部で最低値そして温度上昇部直前で最高値を示している。また長時間ほど窒素移行量が多くなっている。この窒素の挙動はFig. 43に示した炭素の挙動とほぼ同じである。

Yates ら (Harwell) <sup>(35)</sup> は65 L×9 φ O. D. の20%冷間加工したSUS 316に2/3まで20 ppm酸



**Fig. 46** Effects of Exposure in Flowing Sodium on the Nitrogen Contents of Stainless Steels (by G.P. Wozadlo, et al.(30))



**Fig. 47** Surface Nitrogen Distribution (MTL-3-14 and MTL-4-8) (by S.A. Shields, et al.(31))

窒素含有のナトリウムを入れ、窒素雰囲気でアーク溶接した試験片を窒素雰囲気で5週間250～700°Cに保持した。Fig.48は600°Cおよび700°Cにおける厚み方向の窒素分布で、高温であるほどおよび窒素ゾーンほど漫塗が著しくなっている。

<sup>(36)</sup> Borgstedt (GfK) らはSNR候補被覆材を600～730°C、5または10ppm酸素のナトリウム中に最高10,000時間浸漬した。Table.12に試験材の化学成分を、Fig.49～Fig.51に窒素分析値を示す。600°Cでは高窒素のI.4988は窒素量が変化せず、低窒素のI.4970は漫塗している。700°Cでは脱窒が生じ、冷間加工度とともに脱窒量が減少している。比較材のSUS304では温度上昇部は脱窒量が増加し、温度下降部で脱窒量が減少している。また500°Cを除き窒素と炭素の挙動はよく類似している。その他、下流側ほど脱窒量が少ないことを明かにしている。

<sup>(2)</sup> 姫野ら(ナトリウム流动伝熱管)は600°C、4300時間の燃料集合体耐久試験でS-II材表面層が漫塗していることをIMAで確認している。本試験でもFig.28、Fig.30に示すように600°Cでわずかに漫塗している。

<sup>(35)</sup> 本試験を含めた研究例のうち、100%窒素ガス雰囲気におけるYatesら(Harwell)の研究を除くと、いずれも低温側で漫塗が、高温側で脱窒が起っており炭素の挙動とよく類似している。しかしその境界温度が材料の冷間加工度、組成およびナトリウム中の炭素、窒素の活量の影響をうけることを忘れてはならない。

炭素および窒素の金属材料中の活量は、一定の含有量においては温度が上昇すると低下するはずである。高温ナトリウム中で脱炭および脱窒が生ずることは、ナトリウム中のこれら元素の活量の低下が金属材料中の低下より著しいことをあらわす。炭素の場合この原因としては安定なカーバイ

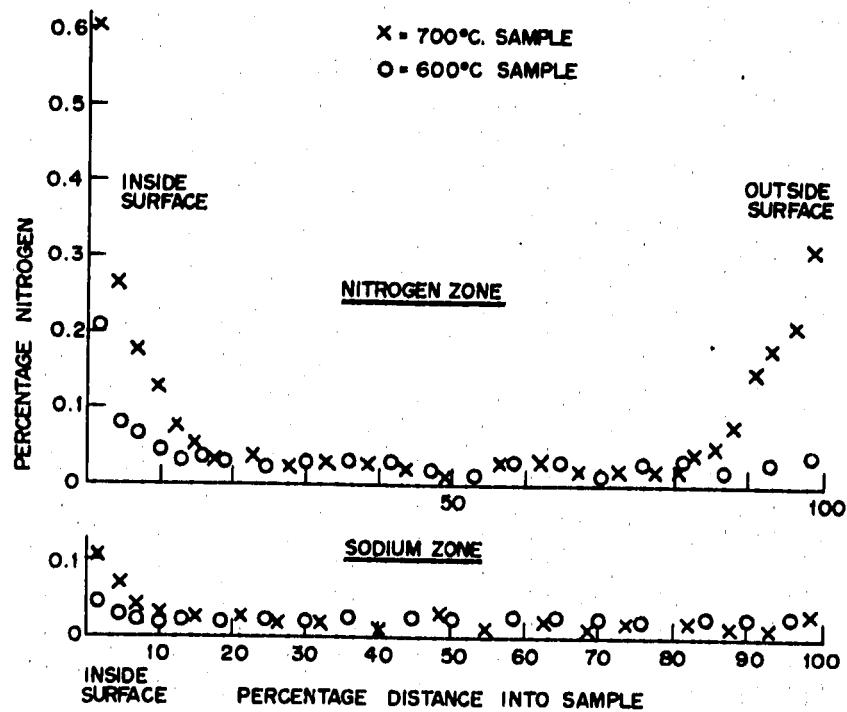
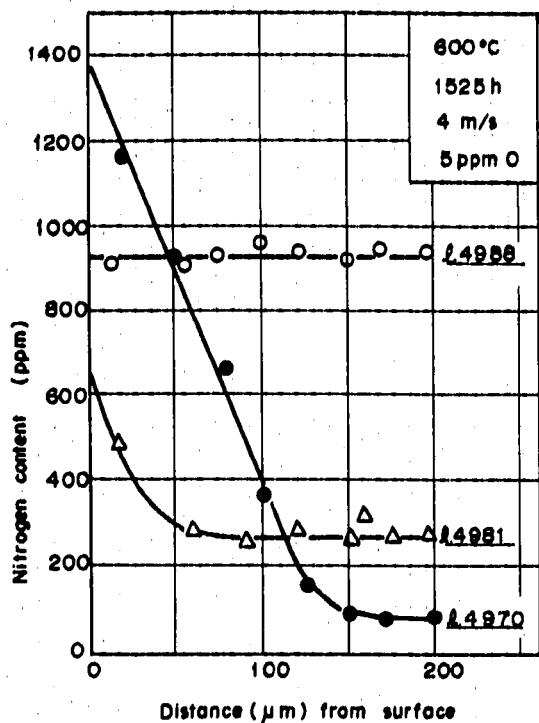


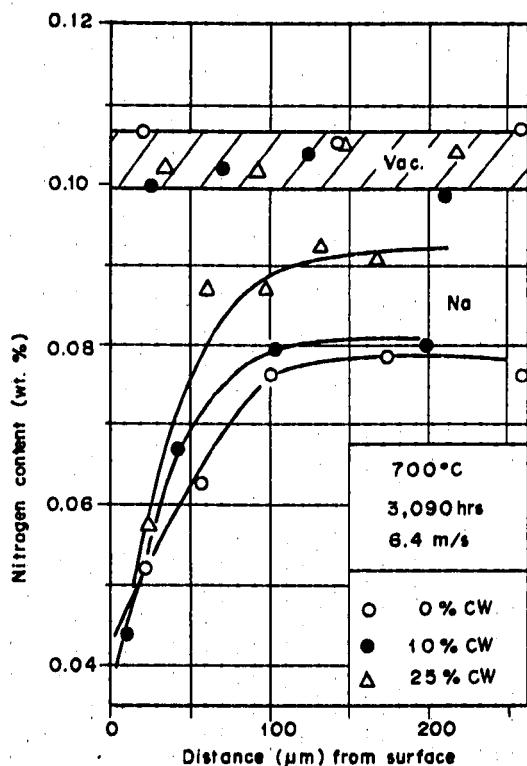
Fig. 48 Clad Nitrogen Profiles (by A. Yates, et al. (35))

**Table 12 Composition of Fuel Cladding Materials (by H. U. Borgstedt, et al. (36))**

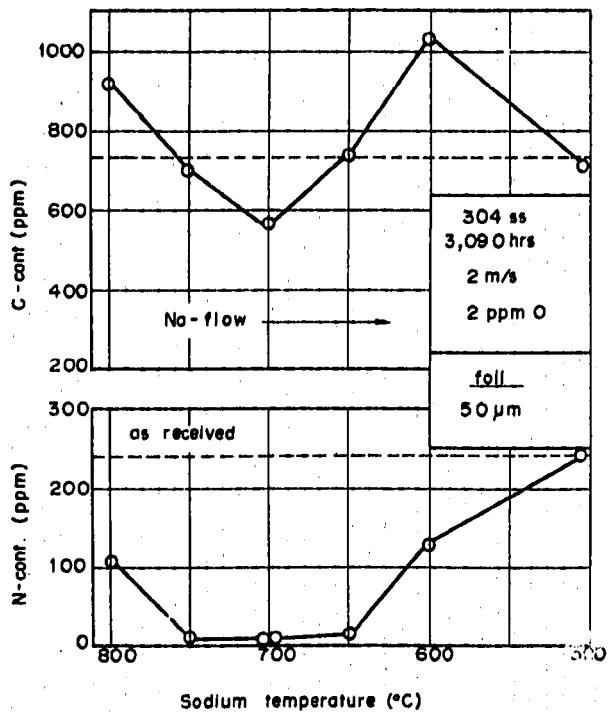
Element (wt%)	Material-No.		
	1.4981	1.4988	1.4970
C	0.05 0.07	0.05 0.07	0.08 0.12
N	≤ .015	0.06 0.10	≤ .015
B	≤ .0015	≤ .0015	.004 .006
Cr	15.5 16.5	15.5 16.5	14.5 15.5
Ni	15.5 16.5	12.5 13.5	14.5 15.5
Mo	1.6 2.0	1.1 1.5	1.0 1.4
Mn	1.1 1.5	1.1 1.5	1.5 2.0
Si	0.3 0.6	0.3 0.6	0.3 0.55
Nb	0.6 0.9	0.6 0.9	
Ti	≤ .05	≤ .05	0.3 0.55
V	≤ .05	0.60 0.85	≤ .05



**Fig. 49 Nitrogen Gradients in Stainless Steels after Sodium Exposure (by H. U. Borgstedt, et al. (36))**



**Fig. 50 Influence of Cold Work on N-Distribution in Steel 1. 4988 (by H. U. Borgstedt, et al. (36))**



**Fig. 51 Correlation between Specimen Position and C/N Movement in AISI 304 Stainless Steel (by H. U. Borgstedt, et al. (36))**

トを作る元素特にCrのナトリウム中存在量が高温ナトリウム腐食により増加すること、およびナトリウム中炭素溶解度の温度依存性が金属材料中より大きいことなどが考えられる。18-8鋼の $\gamma$ 相中への $(Cr, Fe)_{23}C_6$ の固溶度Cは $\log C(w/\%) = -6.120/T(K) + 3.693$ であり、ナトリウム中の炭素溶解度Cは $\log C(w/\%) = -6.440/T(K) + 12.12$ である。<sup>(33)</sup> 18-8鋼の $\gamma$ 相中への $Cr_3N$ の固溶度Cは $\log C(w/\%) = -1.080/T(K) + 0.284$ であるがナトリウム中の窒素溶解度がよくわかっていない。<sup>(34)</sup>

<sup>(35)</sup> Yatesら(Harwell)の100%窒素雰囲気での試験では、SUS 316中より雰囲気中の窒素活量の方が著しく高く( $a_N \approx 1$ )、温度上昇によって移動速度が上昇することおよび金属材料中の窒素活量が低下するのに、カバー窒素ガス中(おそらくナトリウム中でも)では活量低下がおこらないため、高温ほど没窒したものと考えられる。

#### 4.4 材料強度に及ぼすナトリウム腐食の影響

材料強度に及ぼす因子として熱的効果とナトリウム腐食の効果があるが、本試験では明白にこの2つを区別できなかった。今後熱影響分だけを明確に区別する試験が必要である。しかしFig.31とFig.32の短時間引張試験結果をみると650°Cでの引張強さが特にS-Ⅲ材とK-Ⅲ材で高くこれは $\alpha$ 相が原因していると考えられるが、この $\alpha$ 相生成にナトリウム腐食による脱炭、脱窒が影響を与えていると思われる。

材料強度に対するナトリウム腐食の影響については、柚原ら(ナトリウム技術室)がまとめてい  
る。ナトリウム腐食の強度とのかかわり合いという立場から<sup>(36)</sup>

- (1) 一般腐食
- (2) 局部腐食(粒界腐食)
- (3) 脱・浸炭
- (4) 微量成分の質量移行などに分類できる。

一般腐食はナトリウム浸漬前後の重量変化を年間の厚さ変化に換算した値( $\mu m/year$ )が用いられる。<sup>(1, 2, 3, 4)</sup> 現在まで被覆管について多くのデータが報告されているが、筆者らは前報で一般腐食だけにもとづく肉厚減少によって材料強度がどれだけ減少するかを計算によって求めた。それによると極端な場合酸素濃度12 ppmの時クリープ破断寿命が30%低下する。

局部腐食については、CrおよびNiの溶出が特に粒界で起りGroovingを生ずる。Zebroskiら(GE)はSUS 316チューブが650°C、30,000時間のナトリウム浸漬後ホットレグとコールドレグの境界のみに最大0.18 mmの粒界腐食を生じたと報告している。しかしPNCのデータでは明かな粒界腐食は認められず、高酸素ナトリウム、応力腐食割れ、腐食疲れのような特別な雰囲気以外では局部腐食の可能性はないと考えられる。

脱炭現象は材料強度に著しい影響があり多くの研究が行なわれてきた。またC以外にN、Bなども微量であっても強度に著しい影響を与えることが明かにされている。以下に炭素およびその他の微量成分の影響について述べる。

### 炭素の影響

炭素は窒素と同様にオーステナイト鋼中に侵入型に固溶し、クリープによる転位の固着作用により高温強度を増す一因をなしている。しかしナトリウム浸漬により材料中の炭素量が変化するので、単に熱的効果だけで強度変化を推定することは危険であり、実際にナトリウム中に浸漬し炭素移行量を調べる必要がある。ナトリウム中の炭素移行については4.3項に述べた。

材料中の炭素の活量測定はNatesanら(ANL)<sup>(40)</sup>により精力的に行なわれている。彼らは $\text{CH}_4 + \text{H}_2$ ガス雰囲気中で同時浸漬した純Ni管中のC活量を標準とし、Ni, Cr, C量および温度の関数としてFe-Cr-Ni-C 4元系(焼鈍材)のC活量を求めた。Fig.52は725°CにおけるFe-Cr-8Ni-C合金のC活量をCr量およびC量に関しプロットしたもので、図中の破線はNatesanらが開発した(5)式により計算した値である。1000°Cまで実測値と計算値がよく一致していることが明かになっている。

$$\ln a_c = \ln (0.048 \% \text{C}) + (0.525 - 300/T) \% \text{C} - 1.845 + 5100/T - (0.021 - 72.4/T) \% \text{Ni} + (0.248 - 404/T) \% \text{Cr} - (0.0102 - 9.422/T) \% \text{Cr}^2 \quad (5)$$

Fig.53はS-Ⅲ材のNi, Cr量を(5)式に代入し550~700°Cにおける炭素量と炭素活量の関係を求めたものである。高温ほど炭素活量が低下している。S-Ⅲ材の初期炭素量はFig.28より0.063%であるから、650°Cでは炭素活量が約0.01である。Fig.54の点線はFig.53をクロスプロットした

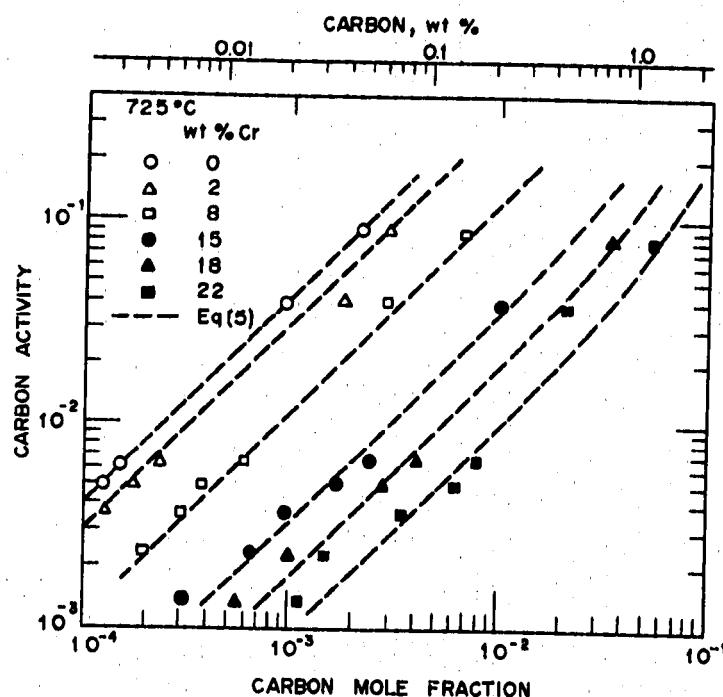


Fig. 52 The Carbon Activity-Concentration Relationship in Fe-Cr-8w/o Ni-C Alloys at 725°C, The Dashed Lines in This Figure Was Calculated Using Eq.[5] (by K. Natesan, et al.(40))

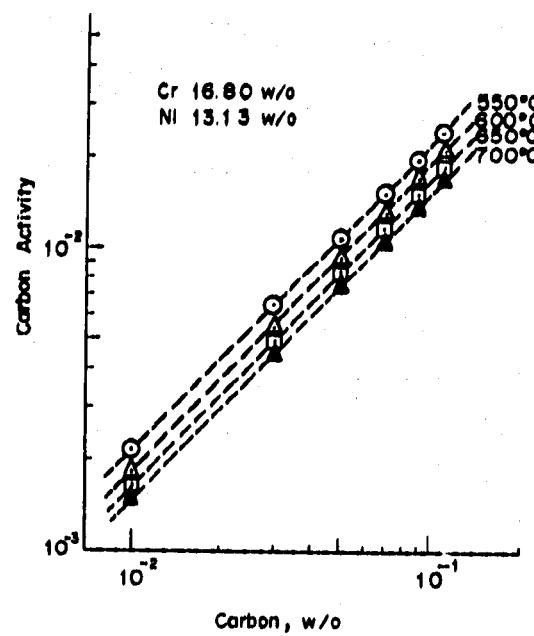


Fig. 53 The Carbon Activity-Concentration Relationship in S-III Cladding Tube

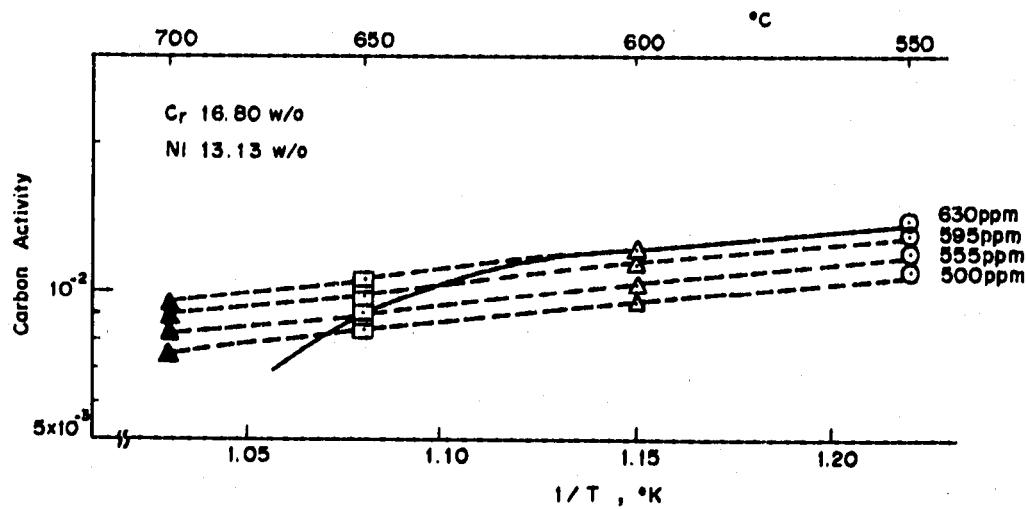


Fig. 54 Change of Carbon Activity due to Decarburization in S-III Cladding Tube

もので、実線はFig.28のS-Ⅲ材の脱炭プロファイルの温度と炭素量の関係より求めたもので脱炭により炭素量が低下するのがわかる。ただし炭素量はBulk分析値であるから炭素活性は被覆管厚さ方向の平均値である。実際にはFig.45に示したように厚さ方向に濃度勾配があり脱炭の場合はナトリウム接液面が最も低濃度となる。ナトリウム中の炭素活性と平衡しているのは被覆管表面だけであるから、ナトリウム中の炭素活性はFig.54の実線よりも低くなる。すなわち、650 °Cでは $9 \times 10^{-3}$ 以下となる。以上、(5)式を本試験結果に適用したが、(5)式が725 °C以下で使用できるかどうかとい

うこと、(5)式が焼純材について求められたのに対し本試験は冷間加工材であること、またCr,Ni以外のC活量に影響を与えるMo, Nb, Vが少址含まれていること、ナトリウム接液面近傍ではナトリウム腐食にもとづくCr, Niの濃度低下があること、ナトリウム腐食による組織変化があることなどにより影響をうけると考えられる。

18-8ステンレス鋼では炭化物(Fe, Cr)<sub>23</sub>C<sub>6</sub>が主に粒界にのみ析出するが、合金元素(V, Nb, Taなど)の添加により、あるいはこれにN, Bを組合せると種類の異なる炭化物MCが粒内に微細均一に析出し強度が著しく改善されることがわかっている。また被覆管のような冷間加工材は焼純材より炭化物が析出しやすくなる。また、Goodell(Michigan Univ.)<sup>(41)</sup>らおよびNatesanら(ANL)<sup>(42)</sup>によってSUS304またはSUS316の長時間(10<sup>5</sup>時間)クリープ破断力に対するC量の効果が報告されている。しかし、上述したと同じ理由によりこれらのデータをそのまま被覆管に適用できないので、実際の被覆管に関する試験が諸外国およびナトリウム技開室で行なわれている。

#### 窒素の影響

窒素は炭素と同様にオーステナイト鋼中に侵入型に固溶する元素であり、次のような特性を有する。

- (1) 強いオーステナイト安定化能を有する。18Cr-8Ni鋼ではNiの25~30倍のオーステナイト生成・安定化効果を示し、δ相の生成や低温でのマルテンサイト変態を抑制すること、Fe-Cr-Ni系のδ相生成範囲をせばめず単相域を広げること、炭化物と同じように窒化物を生成することなどが知られている。<sup>(37), (43)</sup>
- (2) 高温クリープ強度を向上させる。窒素は炭素と同様に固溶限度内で強度を増し、窒素は炭素の1.25倍の効果を示す。<sup>(41), (42)</sup>
- (3) 耐食性の改善。窒素を添加したオーステナイト鋼は炭素添加鋼と同様に粒界にクロム窒化物(Cr<sub>2</sub>N)が析出し粒界腐食が問題となるが、鋭敏化温度範囲でのクロム窒化物の固溶量はクロム炭化物のそれより著しく大きいので多量添加しても粒界腐食が起こらない。一例をあげると、18-8鋼では窒素の固溶度は $\log [\%N] = -1.080/T + 0.284$ 、炭素の固溶度は $\log [\%C] = -6.120/T + 3.693$ で表わされ、650°Cでの固溶度は2桁、800°Cでは1桁窒素が大きい。また炭素固溶度の方が温度依存性が強い。上記特長のうち被覆管と特に関係があるのは高温クリープ強度の向上である。650°CにおけるSUS304または316の長時間(10<sup>5</sup>時間まで)クリープ破断力に対する窒素量および炭素量の効果についてはGoodell(Michigan Univ.)<sup>(41)</sup>らおよびNatesanら(ANL)<sup>(42)</sup>によって報告されているが、いずれも焼純材についてのデータである。ナトリウム浸漬により窒素移行が起ること、被覆管の組成は通常のSUS316と異なること、および被覆管は冷間加工材でありナトリウム浸漬による窒素移行量が焼純材と異なると予想されることなどにより上記データをそのまま使用できず、実際の被覆管に関する試験が当ナトリウム技開室で行なわれつつある。

ナトリウム浸漬による窒素移行ではオーステナイト鋼中の間隙窒素の活性が問題となるが、少なくとも Fe-Cr-Ni-N 4 元系に関する知見が必要となる。しかし、4 元系以上のオーステナイト鋼中の窒素の活性に関する実験的研究はごく最近行なわれるようになったものである。<sup>(43), (44)</sup> 1000 ~ 1200 °C で Ni 批と Cr 批をかえ窒素固溶量と活性の関係が求められている。それによると一定活性のもとでは、Cr 批とともに窒素固溶量は著しく増大し、逆に Ni 批とともに減少した。

18-8 ステンレス鋼の 1600 °C、1 反応のデータによると被覆管組成元素のうち Al, V, Nb, Cr, Ta, Mn, Mo は窒素溶解度を増加し、逆に Si, Co, Ni, Cu は減少させる。<sup>(37)</sup>

Liljestrand ら (Sweden) は AISI 316 L (0.02% C) に 40 ppm B, 0.4% V および 0.12% N を添加することによりクリープ特性が著しく改善されることを示した。その原因としてクリープにより発生する転位上にバナジウム窒化物の細粒が析出すること、この析出硬化により損なわれる延性は粒界での Cr<sub>23</sub>C<sub>6</sub> 析出により改善されること、および B により粒界の結合が促進されることがあげられている。<sup>(45)</sup>

また吉田ら (PNC, FBR 核燃・材料合同専門委、クリープサブグループ) は MONJU 用一次試作被覆管について 650 °C ~ 800 °C 大気中クリープ試験を行ない、クリープ破断強さ、クリープ強さとも「JOYO」用実機被覆管より大きく下まわっていることを示した。その原因の 1 つとして窒素量が 1/4 程度に抑えられたことをあげている。<sup>(46)</sup>

### その他

ボロンは C, N と同様強度および延性に影響を与えると昔られており、本試験でも分析計画中である。

行俊ら (住金) はオーステナイト鋼の高温強度に及ぼす微量元素 (C, N, B, P) の影響をしらべた。Fig. 55 は 18-8 鋼のクリープ破断性質に及ぼす N および B の影響を示しており、破断時間に對し N 同様 B の影響もかなり大きく、延性に對しては N とは逆に B は増加する傾向がある。<sup>(47)</sup>

また太田ら (神鋼) は JOYO 用実機被覆管を大気中クリープ試験し、クリープ破断強度が B の増加とともに改善されることおよび結晶粒が細くなると破断強度が低下することを示した。<sup>(48)</sup>

ボロンはナトリウム浸漬により材料表面より移行することが明らかであり、ナトリウム浸漬による強度変化を考慮する必要がある。次に研究例を示す。Wozadlo ら (GE) は SUS 304 と SUS 316 のバイメタリックループを用いて最高温部の SUS 316 および SUS 321 の B 分析を行なった。Table. 13 はその結果で安定化材でも B の低下がみとめられる。

また Borgstedt (GfK) らは Table. 12 に示した被覆材の B 移行をしらべた。Fig. 56 は B 含有量の高い 1.4970 が表面近傍で 600°C ナトリウムにより B 減少していることを示す。その他、高温ほどまた上流ほど B 減少が著しいことを明かにした。<sup>(49)</sup>

炭素, N, B の他、P も強度に影響を与える。行俊ら (住金) は 16-13-Mo 鋼の高温強度に及ぼす P の影響をしらべ、650 °C では高 P 材 (300 ppm) の方が低 P 材 (40 ppm) よりクリープ破断強度

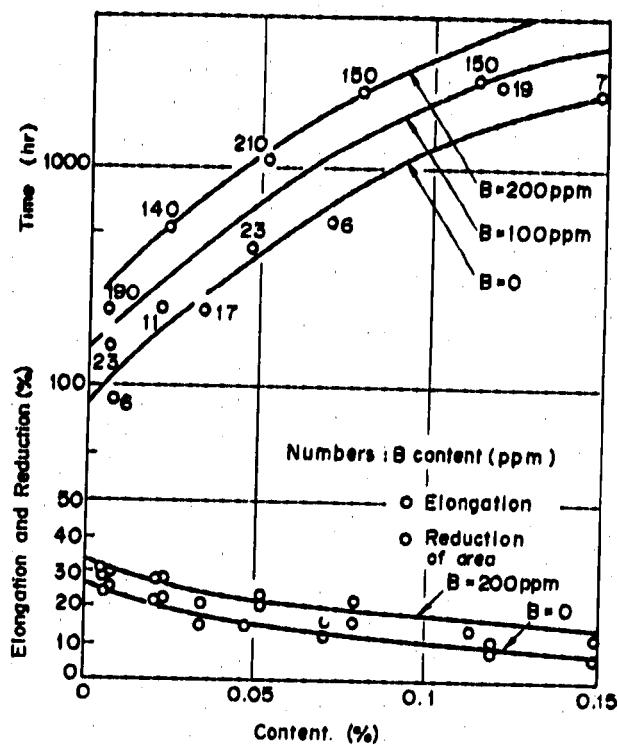


Fig. 55 Effect of N and B on Creep-Rupture Property of 18-8 Stainless Steel ( $650^{\circ}$  C,  $13.0 \text{ kg/mm}^2$ )  
(by T. Yukitoshi, et al.  
(47))

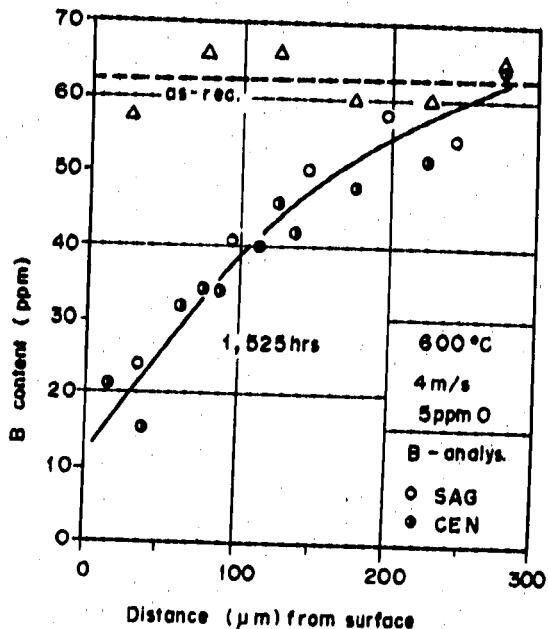


Fig. 56 Boron Loss of Type 1. 4970 Stainless Steel in Sodium  
(by H. U. Borgstedt, et al.  
(36))

Table 13 Boron Analysis (by G. P. Wozadlo, et al. (30))

Temperature ( $^{\circ}$ F)	Time (hours)	Boron (ppm)
Standard (316)		2.2, 2.5
1300	10,352	0.6
1150	11,379	0.4
Standard (321)		1.1, 1.1
1300	10,352	0.9
1150	11,379	0.2

および延性が優れていることを明かにした。Fig.57はクリープ破断性質に及ぼすPの影響を示す。  
リンのナトリウム浸漬による影響についてはWozadloら(GE)が $1300^{\circ}\text{F}$ または $1150^{\circ}\text{F}$ でSUS 316およびSUS 321についてしらべているが、Pはナトリウム腐食をまったくうけない。

(30)

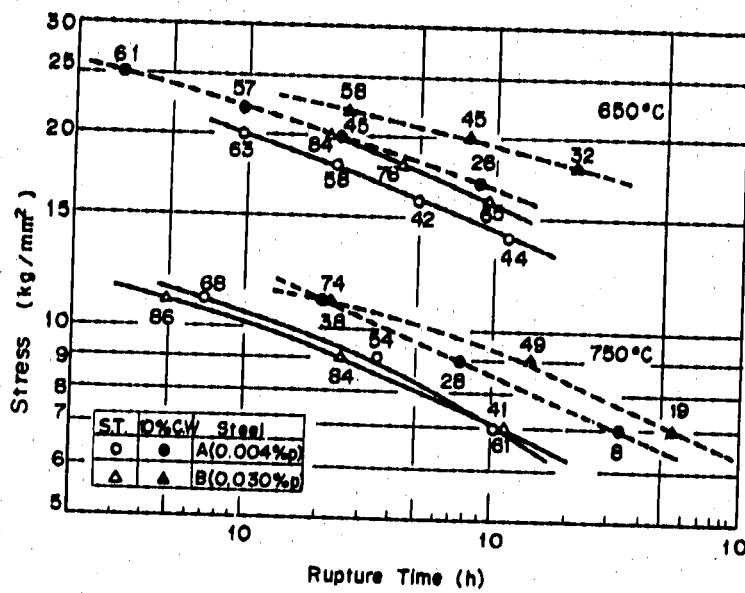


Fig. 57 Effect of P on Creep-Rupture Property of 16-13-Mo Steel (by T. Yukitoshi, et al. (47))

#### 4.5 被覆管材質によるナトリウム腐食の違い

S-II, S-III, K-II, K-IIIおよびC材の5種類の材質についてのナトリウム腐食の違いは次のとおりである。

- (1) 試験後の外観には何ら差はみつけられない。試験前はK-II材の表面が最も粗い。(Photo. 1～Photo. 5 参照)
- (2) 重量測定によるナトリウム腐食量はS-III材が最も多い。(Fig.13 参照)
- (3) C材は高温であるほどかたさが低下するが、S-III材およびK-III材では650°Cの方が548°Cよりかたさが高い。(Fig.19 参照)
- (4) 650°CでC材は $\sigma$ 相が析出しないが、S-II, S-IIIおよびK-III材では析出する。(Fig. 22およびPhoto.11～Photo.15 参照)
- (5) 650°Cですべての被覆管のナトリウム腐食面近傍の粒界にキャビティが生成するが、特にS-III材は厚み全域に分布し、S-IIおよびC材が最も少ない。(Photo.11～Photo.15 参照)
- (6) 高温ほど被覆管組織内の析出物が多くなるが、650°CではK-II, K-IIIおよびS-III材は粒界析出物が減り粒内析出物がふえる。一方S-IIおよびC材は粒界、すべり線、および双晶界面に析出物が多い。(Photo.11～Photo.15 参照)
- (7) 脱炭開始温度は被覆管により異なる。特にK材は約500°Cでも脱炭がはじまる。(Fig.28およびFig.29 参照)
- (8) 脱窒開始温度は被覆管により異なる。特にC材は650°Cでも浸窒する。(Fig.28およびFig.30 参照)

(9) 高温ほど短時間強度は増加するが、特にS-ⅡおよびK-Ⅱ材の650°C強度は試験前より高くなる。逆にS-ⅡおよびK-Ⅱ材の伸びは650°Cで低下している。C材の短時間強度および伸びの温度依存性が最も小さい。(Fig.32参照)

(10) S-Ⅱ、S-ⅢおよびK-Ⅱ材のうちK-Ⅱ材だけが約650°Cで脆化した。(Table. 8 参照)  
これらの現象に影響を与える被覆管材質因子としては冷間加工度、結晶粒度、表面処理および組成が考えられる。

(3) 背木ら(ナトリウム技術室)はSUS 316中の金属元素のナトリウム腐食率における冷間加工度の影響を調べFig.58に示す結果を得た。温度上昇部での溶出が冷間加工度に依存しているのがわかる。またBorgstedt(GfK)<sup>(36)</sup>らが求めたFig.50によると、冷間加工は脱窒量を少なくし、Snyderら<sup>(32)</sup>(ANL)によると低温部の漫炭は冷間加工により促進されることを示している。これらの理由として冷間加工により材料の表面エネルギーが高くなることおよび炭化物等が析出しやすくなり炭素の活性が低下することが考えられる。本試験に使用した被覆管の冷間加工度はTable. 2に示したようにS-Ⅱ材が12%、K-Ⅱ材が10%で、S-ⅢおよびK-Ⅱ材についてははっきりしていない。

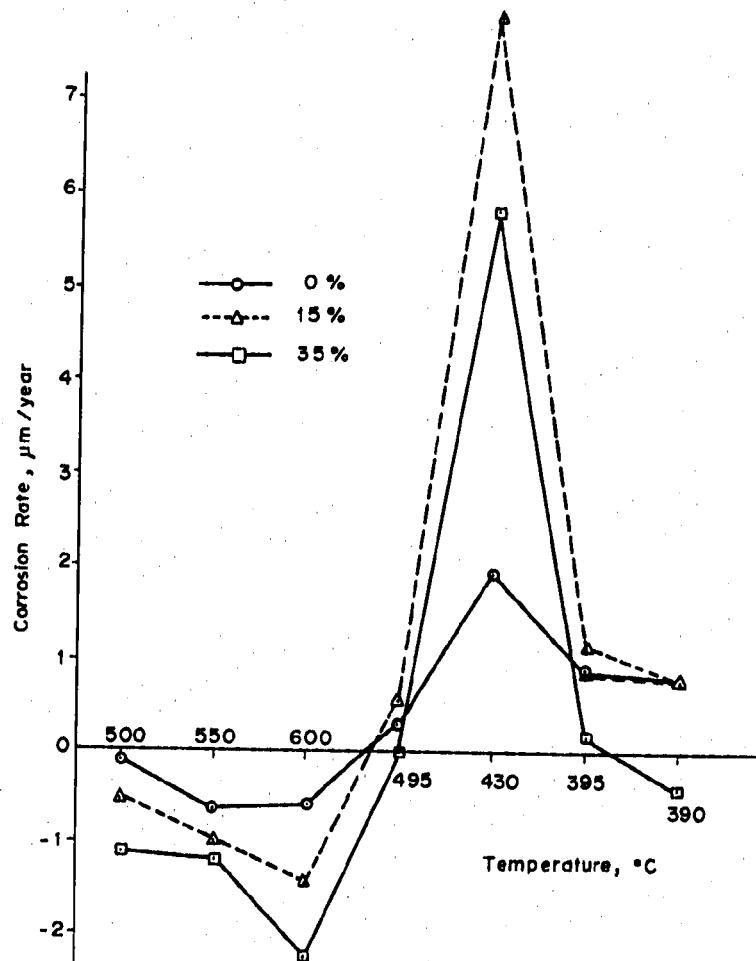


Fig. 58 Effect of Cold Work on Corrosion Rate  
(by N. Aoki, et al.<sup>(3)</sup>)

S-Ⅲ材の方がK-Ⅲ材より2%冷間加工度が高いが、この小さな差だけがS-Ⅲ材の腐食量を大きくしているかどうかは定かでない。

<sup>(3)</sup> また青木ら(ナトリウム技術室)はSUS316の重挫測定にもとづく腐食量に対する結晶粒度の影響は少ないとしている。本試験ではPhoto.11～Photo.15をみると、結晶粒界に生ずるキャビティは主にナトリウム接触面側に分布しキャビティの生成がナトリウム腐食のためと考えられること、またキャビティが結晶粒の大きいS-Ⅲ材とC材では少ないとなどから結晶粒度がナトリウム腐食による組織変化に影響を与えるかもしれない。また金属元素の選択溶出の結果生ずる変質層の厚さ( $\sim 1\mu\text{m}$ )より深い位置にキャビティが分布していることは、キャビティが侵入型元素(C, N, B)のナトリウム腐食により生成すると考えられる。

<sup>(48)</sup> Borgstedtら(GTK)は表面処理法によりナトリウム腐食量がかわることを明かにしている。Fig.59に示すようにインコネルX750の腐食量は酸洗、電解研磨、機械研磨の順に多くなる。本試験の被覆管はいずれも冷間引抜きしたままの状態でTable.6に示す表面あらさであるが、この効果については明かでない。

S-Ⅲ材およびK-Ⅲ材の650°Cにおけるかたさおよび引張強度の上昇はFig.22に示した。相のためである。 $\alpha$ 相はC, N量が低下すると析出しやすくなる。Fig.28より明かにS-Ⅲ材、K-Ⅲ材は脱炭、脱窒により $\alpha$ 相生成が促進され、逆にC材では浸窒したため $\alpha$ 相生成が抑えられたと考えられる。

この炭素および窒素移行はFig.29とFig.30に示したように初期含有量またはヒート依存性がはっ

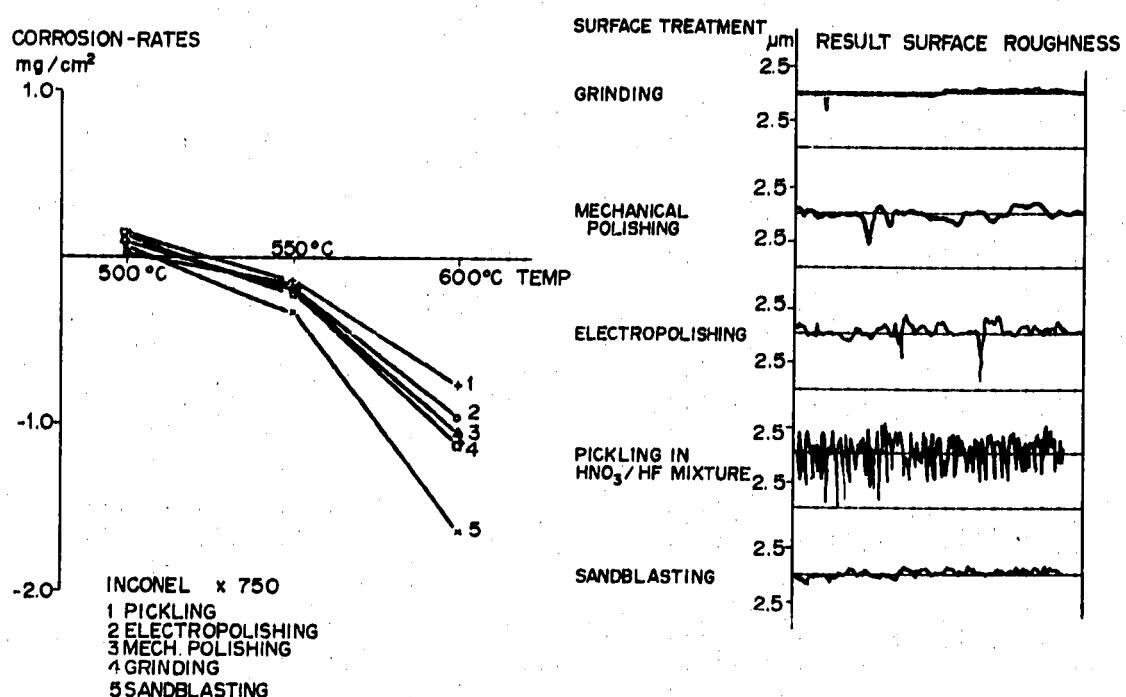


Fig. 59 Corrosion Rates in Liquid Sodium  
(by H.U. Borgstedt, et al. (48))

きりと出ている。この他Table. 1をみると被覆管組成は各元素について少しづつ異なっているがこれらの影響は明かでない。

#### 4.6 ナトリウム腐食に及ぼす熱流束の影響

ナトリウム腐食試験の多くは  $\Delta T$  ループによって行なわれており、試験部間に温度差があるが連続的な温度変化がない。また各々の試験部は等温（または自然放熱分だけ温度降下）に保持されている。

しかし実機炉心では燃料の核分裂による被覆管半径方向の熱流束がナトリウム流にそって発生する。Fig. 60は被覆管のナトリウム接触面近傍における半径方向の温度分布を示したものである。(A)は熱流束のない条件であり、 $\Delta T$  ループの場合に相当する。この場合被覆管温度とナトリウム温度は等しい。しかし(B)の熱流束下では被覆管表面上に温度境界層が生じ、被覆管表面の温度はナトリウムの平均温度より高くなる。また被覆管厚さ方向にも温度勾配が生じ被覆管内面温度はさらに高くなる。これらの温度上昇により被覆管およびナトリウム中の組成元素の拡散速度およびナトリウム中のレイノルズ数が増加しナトリウム腐食量が増大すると考えられる。MONJU 炉心出口位置では  $T_{ci} - T_s$  が約  $30^{\circ}\text{C}$ 、 $T_{co} - T_s$  が  $5 \sim 10^{\circ}\text{C}$  である。

Fig. 61はナトリウム流方向の温度分布である。(A)は $\Delta T$  ループの場合で試験部の温度は一定である。(B)は熱流束のある場合で、試験部のナトリウムおよび被覆管の温度は連続的に上昇するので組成元素の溶解度、拡散係数（または運動量）およびRe数も連続的に変化する。

本試験では熱源が Fig. 7 に示したように被覆管内にはないので被覆管半径方向の温度勾配がなく、Fig. 61(B)の  $T_{ci} = T_{co} = T_s$  の場合に相当する。 $\Delta T$  ループの場合とくらべ被覆管半径方向の温度分

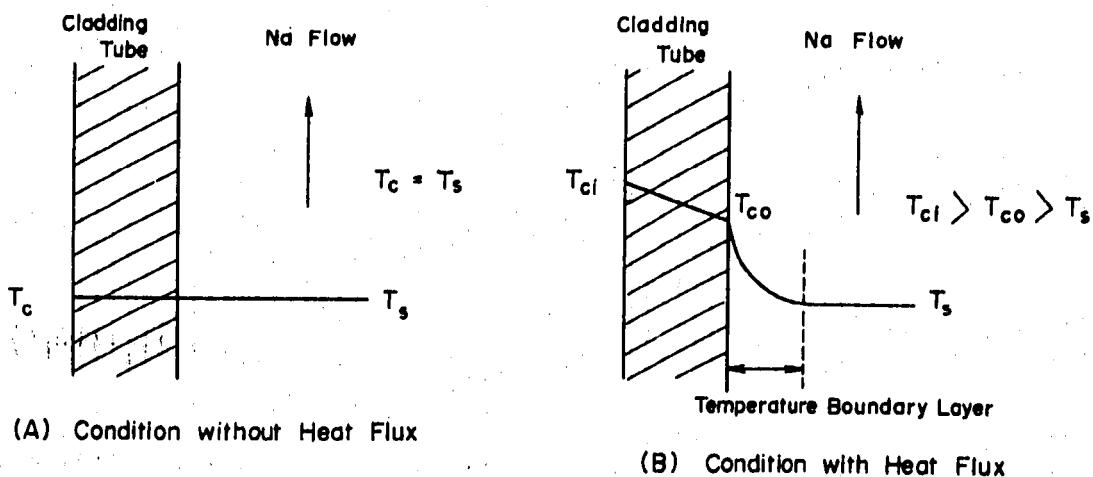


Fig. 60 Temperature Distribution of Radius Direction in the Vicinity of Sodium Exposed Cladding Tube

（注）加熱器出口および冷却器出口の等温部に試験部を設け、試験部間に  $\Delta T$  を与えているループを指す。

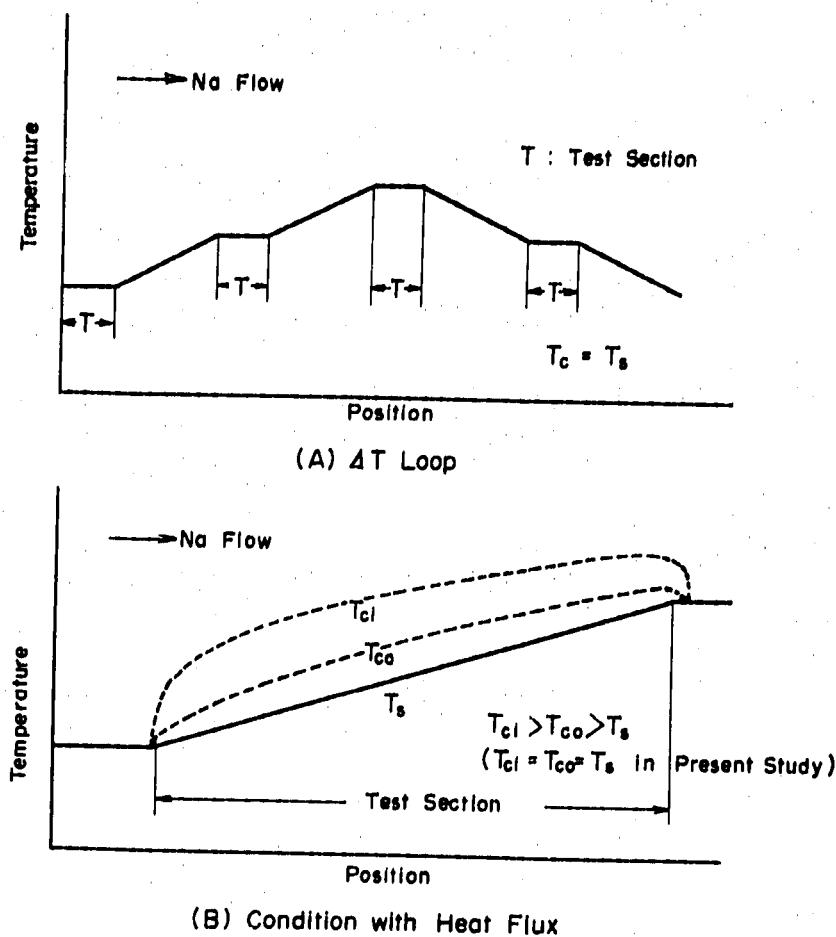


Fig. 61 Temperature Distribution of Sodium Flow Direction in the Vicinity of Sodium Exposed Cladding Tube

分布は同じであるが、ナトリウム流方向に連続的な温度上昇があるので Fig.13 に示したように沈着量にピークが生じた。これは温度上昇により  $Re$  数および拡散係数が増加しナトリウム中に過飽和に存在する不純物の沈着が促進されるためであり、 $\Delta T$  ループの等温試験部ではこのようなピークは生じないであろう。

Fig. 62 は本試験結果をもとに温度勾配と重量変化の関係を式化したものである。加熱部入口に流入するナトリウムが全く同じ状態（温度、不純物量、不純物の存在形態、流动条件などと同じ）である場合、温度勾配が大きくなると沈着が促進され沈着のピークが入口側に移動し、また溶出も促進され試験前より重量が減少する位置が入口側に移動する。さらに沈着曲線および溶出曲線の勾配が大きくなると予想される。

Hapenfeld (AI)<sup>(49)</sup> は Fig. 63 に示す表面熱流束のある条件で SUS 316 を試験し Table. 14 のように  $\Delta T$  ループのデータと比較した。材料表面とナトリウムとの約 55°F の温度差のため腐食量が大きくなっているのがわかる。

また Thorley (REML)<sup>(8)</sup> らは原子炉の一次系を模擬する大型ループにより Fig. 33 に示す結果を得

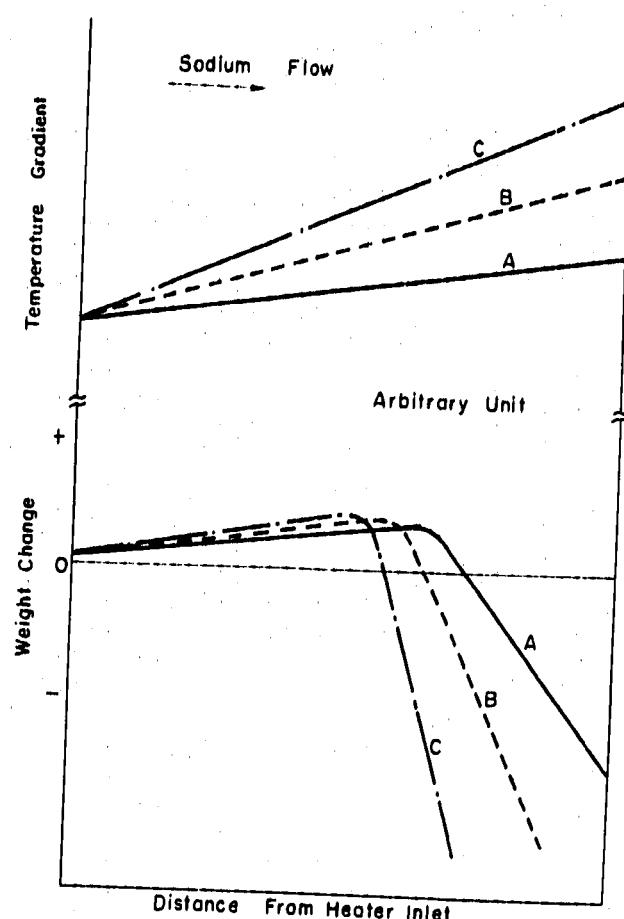


Fig. 62  
Relation between Temperature Gradient and Weight Change

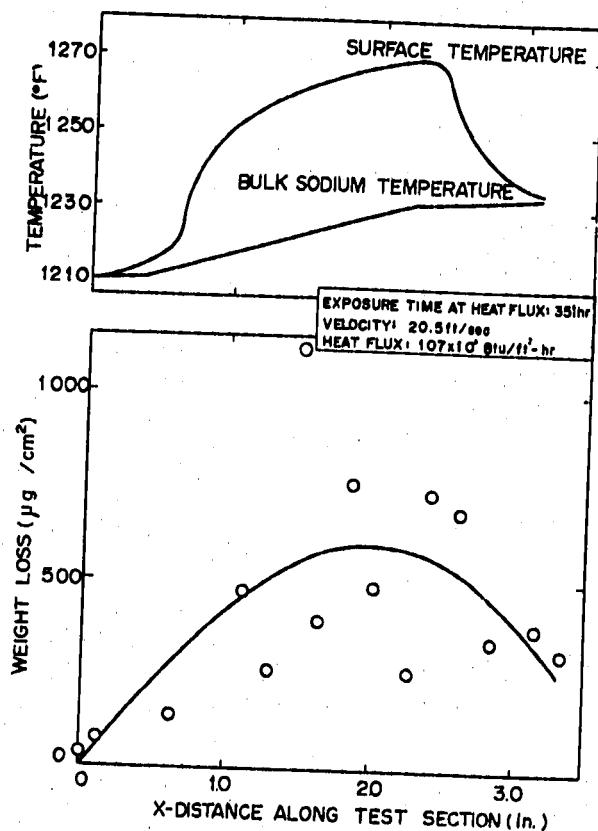


Fig. 63  
Local Variation of Temperature and Weight Loss along Test Section (by J. Hopenfeld<sup>(49)</sup>)

**Table 14 Comparison of Present Corrosion Rate Data  
with the Results of Other Investigations.  
(by J. Hopenfeld (49))**

Temperature (°F)	Velocity (ft/sec)	Material (SS)	Oxygen Content (ppm)	Corrosion Rate (mils/yr)	Source
1266	20.5	316	<5	0.72	by J.Hopenfeld
1307	22	304	4	0.5	Ref. 1
1300	17	316	<10	0.29	Ref. 2
1200	25	316	<5	0.15	Ref. 3

1. A. J. Romano, et al., "Preliminary Results of Haynes 25 and Type 304 Steel with 4 and 12 ppm Oxygen in Sodium at Temperature up to 760°C," Proceedings of the International Conference on Sodium Technology and Large Fast Reactor Design, November 7-9, 1968, ANL-7520, Part 1, page 151.
2. P. Roy, et al., "Mass Transfer and Corrosion of Stainless Steel in Flowing Sodium System at 1300°F," Proceedings of the International Conference on Sodium Technology and Large Fast Reactor Design, November 7-9, 1968, ANL-7520, Part 1, page 131.
3. A. W. Thorley and C. Tyzack, "The Corrosion Behavior of Iron and Nickel-Based Alloys in High Temperature Sodium," TGR Report 1356 (C), November 1966.

た。本試験と同様な沈着ピークがわずかに生じており、また溶出量の増加率が大きいことがわかる。  
沈着ピークの位置が本試験結果より入口側にあるのはレイノルズ数が高いためと考えられる。

## 5. 結 論

JOYO 用燃料被覆管（S-II, S-III, K-II, K-III および C 材）を連続的に温度が上昇する 425 ~ 660°C 流動ナトリウム中に 5000 時間浸漬した結果次のことがわかった。

- (1) 被覆管材質によりナトリウム腐食挙動が違う。
- (2) 連続的な温度上昇下（熱流束下）でのナトリウム流方向の腐食量の変化は熱交換器出口等温部に試験部を設けた試験のものと著しく異なる。
- (3) ナトリウム腐食量は S-II, S-III および K-III 材のうち S-III 材が最も多い。
- (4) 650°C で S-II, S-III および K-III 材は  $\alpha$  相が生成するが C 材は生成しない。また S-II および S-III 材は表面に  $\alpha$  相が検出できたが、K-III および C 材は検出できない。
- (5) ナトリウム接液面側にキャビティが生成する。特に S-III 材は厚み全体に分布する。
- (6) 連続的に温度上昇するナトリウム中試験により脱炭および脱窒開始温度がわかった。脱炭開始温度にはヒート依存性があり、脱窒開始温度には初期窒素含有量依存性がある。
- (7) 約 600°C における沈着物の主成分は Cr-Na-O 化合物の可能性がある。
- (8) 室温での短時間引張強さおよびかたさの浸漬温度依存性を調べると S-III および K-III 材が高いレベルを示し、C 材のレベルは低い。
- (9) 被覆管のナトリウム腐食によって高速炉にもたらされる問題点を文献調査により明かにできた。

## 6. あとがき

本試験で問題となる点は次のとおりである。

- (1) 実機炉心とくらべ半径方向の熱流束のこと。
- (2) 実機炉心とくらべナトリウム流速が著しく低かったこと。
- (3) ナトリウム腐食の影響と熱影響を区別できなかったこと。
- (4) 温度計測法が不充分なものであったこと。
- (5) ナトリウム中の不純物汚染が不明確であること。
- (6) ナトリウム腐食機構に不明確な点があること。
- (7) 試験後の諸処理（ナトリウム処理等）で腐食表面が変化してしまう可能性があることなどである。

しかし本試験で被覆管のナトリウム腐食に対する材質および温度勾配の影響に関し基礎的知見が得られたと考えられる。今後MONJU用燃料被覆管についても試験を行ないデータの蓄積と信頼性の向上をはかり、高速炉燃料集合体の設計および健全性評価のための資料としたい。

終りに、本試験を遂行するにあたり御指導賜った齊藤部長および現電中研青木氏、試験片の製作を担当していただいた東海事業所検査業務課の方々に感謝の意を表する。ナトリウムループの運転保守ならびに一部の試験を分担されたナトリウム技開室員に深謝する。

## 7. 燃料被覆管の製作および設計上の問題点 (ナトリウム環境効果の見地より)

5種類の燃料被覆管を連続的温度勾配のある425～660°Cナトリウム中に5000時間浸漬した本試験の結果から推定できる燃料被覆管の製作及び設計上の問題点並びに今後の課題を次に列挙する。

### (1) 組 織

650°Cナトリウム中に5000時間浸漬すると、相およびキャビティが生成するが、材質（微細化学成分及び調質条件の微妙な相違）により生成量が異なる。これらはナトリウム腐食の影響をうけると考えられる。

### (2) 炭素移行および窒素移行

高温側で被覆管は脱炭および脱窒する。脱炭開始温度にはヒート依存性があり、脱窒開始温度には初期窒素含有量依存性がある。炭素および窒素は材料強度に大きな影響をあたえるので、脱炭および脱窒による強度低下分を見積ることおよび脱炭および脱窒が起りにくい材質を得る必要がある。

### (3) 強 度

室温短時間引張試験によると650°C被漬材では引張強さが増加し、伸びが低下するが、その程度は材質により異なる。上述の相、キャビティ、脱炭および脱窒が影響していると考えられる。よって650°C、5000時間の材料強度特性がナトリウム腐食の影響をうけると推定される。

### (4) 伝熱流動

温度上昇部でも被覆管表面に沈着が起る。この沈着による熱伝達特性および流動圧力損失の変化を評価する必要がある。

### (5) 热流束（または連続的温度勾配）

熱交換器出口等温部での試験と併せて熱流束（または連続的温度勾配）のある試験ではナトリウム腐食挙動が異なり、燃料被覆管のナトリウム腐食を評価するためには熱流束（または連続的温度勾配）のある条件下で試験するのが望ましい。

## 8. 文 献

- (1) S. Yuhara, S. Kanoh, et al., "Corrosion Behavior of the Cladding Tube (AISI Type-316SS) for FBR in High Temperature Sodium, (I) Experimental Studies on the Oxygen Concentration Dependence of the Corrosion in Sodium," PNC Report, SN941 73-24, July (1973)
- (2) Y. Himeno, et al., "Sodium Flow Test Results for Dummy Core Subassemblies of the Experimental Fast Reactor JOYO, (V) Metallographic Test," PNC Report, SN941 74-17, April (1974)
- (3) N. Aoki, et al., "Mass Transfer of Cladding Tube Material SUS316 in Flowing Sodium, Influence of the Cold Work and the Grain Size on the Corrosion," PNC Report, N941 74-64, June (1974)
- (4) A. Maruyama, et al., "Corrosion by High Temperature Sodium of Austenitic Stainless Steel," PNC Report, SN941 74-88, Dec. (1974)
- (5) J. R. Mihalisin, et al., "Sigma-- Its Occurrence, Effect, and Control in Nickel--Base Superalloys," Transactions of the Metallurgical Society of AIME, Vol.242, Dec. (1968)
- (6) 太田定雄, 他「高速炉燃料被覆管のクリープ試験(第5次)」 SJ 216 75 - 01, July (1975)
- (7) S. Yuhara, et al., "Creep and Creep-Rupture Properties of the Nuclear Fuel Cladding Tube for Fast Breeder Reactor in High Temperature, On the 3rd Cladding Tube (AISI Type 316SS) for MK-I Core of JOYO," PNC Report, SN941 76-07, Jan. (1976)
- (8) A. W. Thorley, et al., "Fission and Corrosion Product Behavior in Primary Circuits of LMFBR, A Status Review of Work Being Undertaken in the UK," Proceedings of IAEA Specialist Meeting at Dimitrovgrad, Sept. (1975)
- (9) S. Matsumoto, et al., "Performance Test on the Regenerative Heat Exchanger for Sodium Flow and Heat Transfer Test Loop (I), (II) and (III)," PNC Report, SN941 72-13, July (1972), SN941 73-52, Sept. (1973) and SN941 75-23, Jan. (1975)

- (10) K. T. Claxton, et al., "Effects of Corrosion Product Transport in Fast Reactors," Proceedings of the International Conference at Nottingham, April (1973) pp.289-300
- (11) C. A. Erdman, et al., "Radioactive Behavior during Normal Operation of Liquid-Metal-Cooled Fast Breeder Reactors, Part 1:Production and Part 2:Transport," Nuclear Safety, Vol.16, No. 1 and No. 3 (1975)
- (12) T. J. Kabele, et al., "Activated Corrosion-Product Radiation Levels near FFTF Reactor and Closed -Loop Primary System Components", HEDL-TME 72-71, May (1972), also Trans. Amer. Nucl. Soc., Vol.16, 108 (1973)
- (13) G. P. Wozadlo, et al., "Calculated Radioactivity of the FFTF Primary Sodium System due to Mass Transfer," GEAP-13671, Aug. (1971)
- (14) W. F. Brehm, et al., "Radioactive Material Transport in Flowing Sodium System," Corrosion by Liquid Metals, Plenum Press (1970) pp.97-113
- (15) N. Sekiguchi, et al., "Transport and Deposition of Radioactive Corrosion Product in Flowing Sodium (I)," PNC Report, SN941 73-51, Oct. (1973)
- (16) E. Ishibashi, et al., "Sodium Flow Test Results for Dummy Core Subassemblies of the Experimental Fast Reactor JOYO (II)," PNC Report SN941 73-34, Aug. (1973)
- (17) Y. Himeno, et al., "ibid., (VI) Data Analysis of the Pressure Loss Increase of JOYO and FFTF Fuel Subassemblies," PNC Report SN941 75-76, July (1975)
- (18) Y. Himeno, et al., "ibid., (V) Surface Finish of Cladding Tubes," PNC Report SN941 75-67, July (1975)
- (19) G. A. Whitlow, et al., "Sodium Corrosion Behavior of Alloys for Fast Reactor Applications," Proceedings of the Symposium at Detroit, Oct. (1971)

- (20) P. Roy, et al., "The Evaluation of Particulates Deposited in Flowing Non-Isothermal Sodium Systems," Corrosion by Liquid Metals, Plenum Press (1970) pp.1-20
- (21) J. H. Devan, "Corrosion of Iron- and Nickel- Base Alloys in High Temperature Sodium and NaK," SM-85/32, Alkali Metal Coolant, IAEA (1967)
- (22) T. Tsuchiya, et al., "Abnormal Indication of Flow Meter Voltage of EMF at 1MW Steam Generator Test Facility," PNC Report SN941 74-27, April (1974)
- (23) P. Roy, et al., "Effects of Sodium Exposure on the Corrosion and Strength of Stainless Steels, Section 3 Corrosion and Mass Transfer," GEAP-10394, Aug. (1971)
- (24) A. W. Thorley, C. Tyzack, "Corrosion and Mass Transport of Steel and Nickel Alloys in Sodium," Proceedings of the International Conference at Nottingham, April (1973) pp.257-273
- (25) S. Kanoh, et al., "Corrosion Behavior of the Cladding Tube (AISI Type-316 SS) for FBR in High Temperature Sodium (III)," PNC Report to be Printed in 1976
- (26) R. M. Singer, et al., "Measurements of the Solubility of Iron and Chromium in Sodium," Corrosion by Liquid Metal, Plenum Press (1970) pp.561-576
- (27) S. Yuhara, et al., "Creep and Creep-Rupture Properties of the Nuclear Fuel Cladding Tube for Fast Breeder Reactor in High Temperature Sodium, On the 2nd Cladding Tube (AISI Type-316 SS) for MK-I Core of JOYO," PNC Report N941 75-46, June (1975)
- (28) D. W. Sandusky, et al., "Influence of Long-Term Sodium Exposure on the Composition and Microstructure of Austenitic Alloys," J. of Nuclear Materials, Vol.46 (1973) pp.225-243

- (29) M. M. Paxton, et al., "The Effect of Chemistry Variations on the Recrystallization Temperature of 20 % Cold-Worked Type 316 Stainless Steel," Nuclear Technology, Vol.25, March (1975) pp.546-552
- (30) G. P. Wozadlo, et al., "Effects of Sodium Exposure on the Corrosion and Strength of Stainless Steels, Section 4 Influence of High Temperature Exposure in Flowing Sodium on the Composition, Microstructure, and Mechanical Properties of Stainless Steels," GEAP-10394, Aug. (1971)
- (31) S. A. Shiels, et al., "Interstitial Mass Transfer in Sodium Systems," Exchange Report of Japan-U.S.A. FBR Meeting, A014 72-03-62, April (1972)
- (32) R. B. Snyder, et al., "A Generalized Method of Computing Carbon-Diffusion Profiles in Austenitic Stainless Steels Exposed to a Sodium Environment," ANL-8015, June (1973)
- (33) T. Funada, et al., "Creep and Creep-Rupture Properties of the Nuclear Fuel Cladding Tube (Type-316SS) for Fast Breeder Reactor in High Temperature Sodium," PNC Report N941 74-31, May (1974)
- (34) T. Funada, "Carbon Behavior in Liquid Sodium," PNC Report N942 75-01, Sept. (1975)
- (35) A. Yates, R. Paris, "The Compatibility of Type 316 Stainless Steel and Nitrogen in the Presence of Sodium," B045 AERE-R 7607, Nov. (1973)
- (36) H. U. Borgstedt and E. D. Grosser, "Interstitial Element of Austenitic Stainless Steels in Sodium," Proceedings of the International Conference at Nottingham, April (1973) pp.275-282
- (37) 長谷川正義, 他, ステンレス鋼便覧, 日刊工業新聞社, p. 61, 73, 75
- (38) 柚原俊一, 他, 高速炉材料の強度におよぼすNa腐食の影響, 環境と強度要旨集, 日本金属学会, 日本国際学術振興会共催, 8月 (1975) p. 1 - 5

- (39) E. L. Zebroski, et al., "Effects of Mass Transfer, and of Changes in Properties, on Austenitic Steels in Flowing Sodium," Proceedings of a Symposium on Alkali Metal Coolants, IAEA, Vienna (1967) pp.195-211
- (40) K. Natesan and T. F. Kassner, "Thermodynamics of Carbon in Nickel, Iron-Nickel and Iron-Chromium-Nickel Alloys," Metallurgical Transactions, Vol. 4, Nov. (1973) pp.2557-2566
- (41) P. D. Goodell, et al., "The Influence of Nitrogen and Certain Other Elements on the Creep-Rupture Properties of Wholly Austenitic Type 304 Steel, J. of Basic Engineering, Transactions of the ASME, Sept. (1967) pp.517-524
- (42) K. Natesan, et al., "Effect of Sodium on Mechanical Properties and Friction-Wear Behavior of LMFBR Materials," Reactor Technology, Vol.15, No. 4 (1972-1973) pp.244-277
- (43) 菊地実, 他「オーステナイト鋼中の窒素の活量」, 鉄と鋼, №13 (1975) p. 120 - 131
- (44) 脇田三郎, 他「Fe - 28 %Ni オーステナイトに 1000 °Cで固溶した窒素の活量に及ぼすクロムの影響」, 鉄と鋼, №6 (1974) p. 119 - 121
- (45) L. G. Liljestrand, et al., "The Mechanism of Improved Creep Strength in a New Austenitic Stainless Steel," Metallurgical Transactions, Vol.6A, Feb. (1975) pp.279-286
- (46) 吉田進, 他「高速炉用燃料被覆管のクリープ試験(第4次)」, PNC Report SN241 75-10, April (1975)
- (47) 行俊照夫, 他「オーステナイトステンレス鋼の高温強度に及ぼす微量元素の影響」, 学振 123 委員会耐熱金属材料研究報告, Vol. 14, №1 (1973) p. 19 - 29
- (48) H. U. Borgstedt, et al., "Influence of the Surface Quality on the Liquid Sodium Corrosion of Nickel Alloys," Proceedings of a Symposium on Alkali Metal Coolants, IAEA, Vienna (1967) pp.119-130

- (49) J. Hopenfeld, "Corrosion of Type 316 Stainless Steel with Surface Heat Flux in 1200°F Flowing Sodium," Corrosion by Liquid Metal, Plenum Press (1970) pp.33-39
- (50) S. Mizobuchi, S. Kanoh, et al., "Self-Welding Behavior of Various Materials in a Sodium Environment (I), (II), (III) and (IV)," PNC Report SN941 73-32, Aug. (1973), N941 74-18, March (1974), SN941 75-12, Jan. (1975) and SN941 75-13, Dec. (1974)

## 9. Appendix

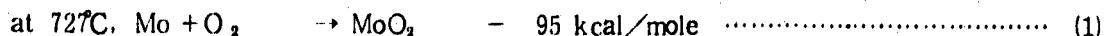
### ナトリウムによる腐食生成物に関する研究例

(1)

Horsley (Harwell) により酸素含有ナトリウム中でステンレス鋼表面にできる腐食生成物を同定する最初のこころみがなされた。10 ppm - 10% の酸素を含有するナトリウム中に 500 ~ 700 °C, 7 日間鉄を浸漬し、表面に生成した腐食生成物と別に合成した Na - Fe 酸化物を X 線回折により比較し  $(\text{Na}_2\text{O})_2 \cdot \text{FeO}$  の存在を確認した。 $(\text{Na}_2\text{O})_2 \cdot \text{FeO}$  の安定性はナトリウム中の酸素活量に依存した。また彼はナトリウム中の酸素活量を測定する方法としてはじめて固体電極を用いる電気化学的方法を提案した。

(2)

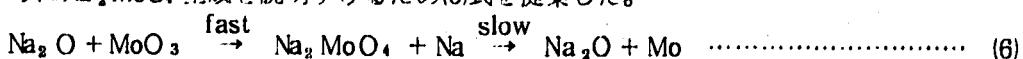
Roberts (UK) は高温ナトリウム中における摩擦、摩耗に影響を与える因子として材料表面に生成する酸化物についていくつかの研究を列挙して検討を行なっている。以下にその概要を記す。Kissel ら (BMI) はキャップセルに入れた  $\text{MoO}_3$  と Na が ~ 775 °F で発熱反応するのを示差熱分析で見出した。また電子線回折により Na 蒸気にさらされた Mo 表面上に  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  を、W 表面上に  $\text{Na}_2\text{WO}_4$  を見い出した。 $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  の生成反応式を 5 つあげ、平衡定数よりこれらの反応が急速に起るものと推定している。Roberts は空気中で存在する  $\text{MoO}_3$  および  $\text{WO}_3$  はナトリウム中では(1)(2)(4)式に示すように  $\text{Na}_2\text{O}$  より熱力学的に不安定であるので還元されてしまい、



これらの複合化合物が生成する反応式として(5)式を提案している。



Glaeser らは  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  生成を説明するため(6)式を提案した。



Roberts は初期に生成した  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  の表面の一部が Mo に還元され、この第二層 ( $\text{Na}_2\text{O} + \text{Mo}$ ) が下層の  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$  を保護する可能性があるとしている。Addison らは粉末状の  $\text{MoO}_3$  および  $\text{WO}_3$  とナトリウムとの反応生成物は  $\text{Na}_3\text{M}_2\text{O}_6$  型であるとしている。(3)式と(4)式に示すように Cr 酸化物は Na 酸化物と同じ位の安定性があり、高純度 Na 中で(7)式のように Na - Cr 酸化物が生成する可能性が大きくなる。



Glaeser は同じ物理的性質を有し、Cr, W, Mo の組成の異なるハステロイ B とハステロイ C を 650 °C まで摩擦試験し、Cr と W は 100 ~ 650 °C のナトリウム中で、Mo は 400 °C 以下すぐれた耐摩擦性があることを示した。彼によると熱力学的に  $\text{Na}_2\text{CrO}_4$  の生成が説明づけられないので、この Cr の特性は大気中で生成した酸化物が Na 中で残留したためであるとしている。Wilson らは X 線回折により

$\text{Cr}_2\text{O}_3$  粉末と Na との反応生成物は  $\text{NaCrO}_2$  であるとしている。以上、Roberts の論文を紹介した。

Hilltz(MSA)は $1200^\circ\text{C}$ , 20ppm以上の酸素濃度で 300 シリーズステンレス鋼表面に灰色のスケールを観察した。このスケールははじめ表面に生成し粒界に沿って母材内に浸透するが、容易にはがれるので正確な腐食量を求めるることは難しく、また X 線、電顕および XMA によりこのスケールが  $\text{Na}_2\text{Cr}_2\text{O}_4$  であることを確認した。 $1400^\circ\text{F}$ になるとこのスケールは緑色を呈したが化学形態は確認できなかった。

Jansson ら (WH) は Na-Cr-O 系のナトリウム中の酸素活性を液体ナトリウム酸素計により測定し、 $\text{NaCrO}_2$  (Jansson らが自ら同定したわけではなく、他の研究者の報告より  $\text{NaCrO}_2$  が生成するとしている) が高温で安定に存在することを確認した。即ち、175 g の原子炉級ナトリウムの入った Cu でライニングした静的ポット (ポット材と酸素の反応を抑えるため、ナトリウム中に最も不安定な酸化物を形成する Cu でライニングした) に 100 メッシュの Cr 粉末を加え、ナトリウム温度を  $300 \sim 520^\circ\text{C}$  の間を一定速度で加熱冷却して酸素計の出力電位を求めた。Fig. 1 は Cr 粉末が 25 g の時の電位変化である。Cr が存在すると高温側で電位上昇 (酸素活性の低下を示す) し、冷却してももともとどらない。Cr がない時は加熱側冷却側とともにほぼ同じ電位変化である。Fig. 2 はこの電位変化を Nernst の式を用い酸素活性におきかえたものである。同時に  $\text{Na}_2\text{O}$  と  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  のデータと常温における各種酸化物および double oxide のデータものっている。この図より Na-Cr-NaCrO<sub>2</sub> 系では高温まで  $\text{NaCrO}_2$  が安定に存在し、Cr の存在により酸素の活性が低下するのがわかる。

Gross ら (Fulmer Research Institute) は  $500 \sim 600^\circ\text{C}$  におけるナトリウム酸化物およびナトリウ

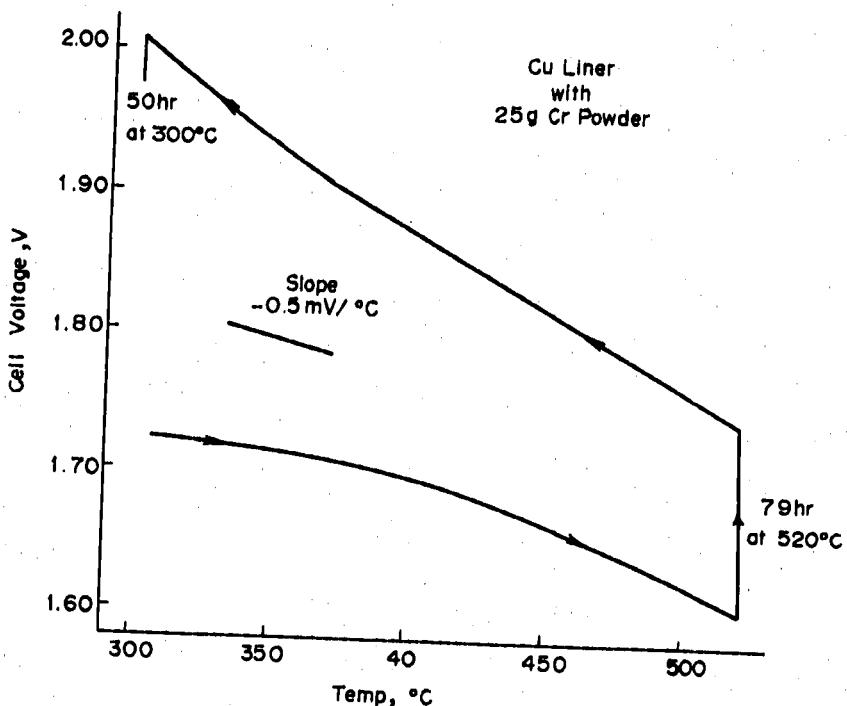


Fig. 1 Voltage vs. temperature behavior in experiment with a copper liner and 25g of chromium powder in the sodium (by S. A. Jansson, et al. (4))

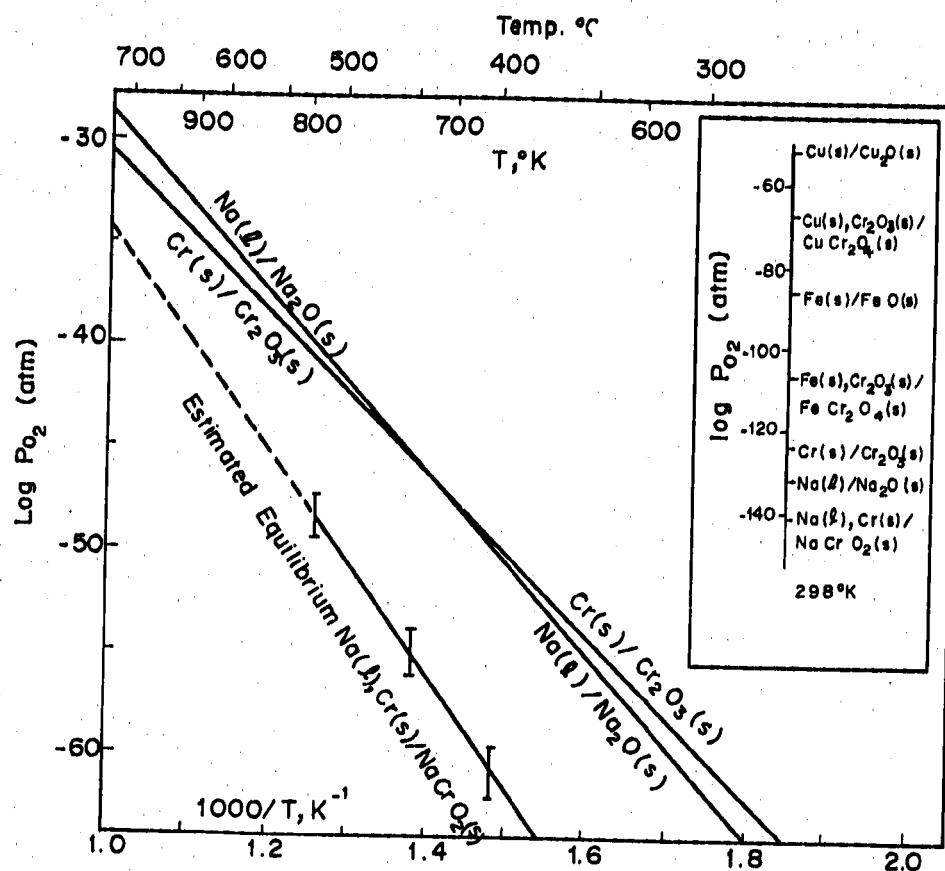
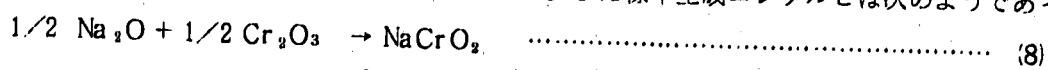
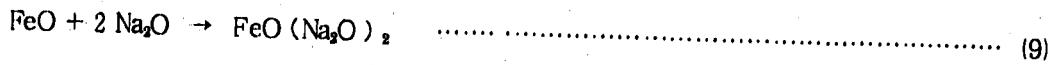


Fig. 2 Variation in the Calculated Oxygen Potential for the Estimated Equilibrium  $Na(l)$ ,  $Cr(s)/NaCrO_2(s)$  and Comparison with the  $Na(l)/Na_2O(s)$  and  $Cr(s)/Cr_2O_3(s)$  Equilibria.  
(by S. A. Jansson, et al. (4))

ム蒸気とCr（またはFe）との反応について調べた。軟鋼製の容器の一方にナトリウムを他方にNi箔ポートに入れたCr（またはFe）と $Na_2O$ の粉末をおき、真空中で加熱し飽和ナトリウム蒸気圧下で反応させた。反応生成物の化学分析、X線Power Photography、反応熱測定を行ない、反応物が $NaCrO_2$ または $FeO(Na_2O)_2$ であることを明かにした。また標準生成エンタルピは次のようにあった。



$$\Delta H_{298}^{\circ} = -24.24 \pm 0.24 \text{ kcal/mol}$$



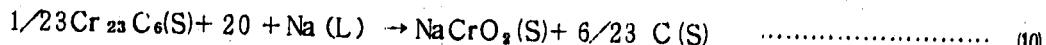
$$\Delta H_{298}^{\circ} = -25.07 \pm 0.55 \text{ kcal/mol}$$

Roy ら (GE)<sup>(6)</sup> は SUS 316 および SUS 304 の 800 ~ 1300°F バイメタリックループを用い 3500 時間の質量移行試験を行ない生成した沈着物の分析を行なった。Table. 1 はループ各所から回収された沈着物の成分である。フィルター中に多量の Si が検出された。Si は酸素と Na と反応しステンレス鋼より溶出し非結晶質の  $Na_2SiO_3$  を生成したと考えられる。その理由として熱力学データによると  $Na_2SiO_3$  は 0.1 ppm 以下の酸素を含有するナトリウム中でも安定であり、酸素量が高くなると Si の選択溶出が増加する。またフィルター内のシリコンはすべて水溶性 ( $Na_2SiO_3$  は水溶性) であったことが挙げら

Table 1 Average Elemental Composition of Various Deposits (by P. Roy, et al.(6))

Source of Deposit (and Temperature)	Element (%)							
	Fe	Cr	Ni	Na	Mn	Si	Ca	C
Impingement Cartridge (1070°F) (Low O <sub>2</sub> )	6	35	25		7	-	-	~3
Economizer (300-700°F) (Low O <sub>2</sub> )	21	13	10	14	-	6	-	-
Ni Filter (600°F) (Low O <sub>2</sub> )	5	4	2	40	6	6	1.1	~2
Ni Filter (600°F) (High O <sub>2</sub> )	2	5	1.6	40	1	17	-	-

れている。Table. 2 はX線回折によりしらべられた化学成分の存在量の違いを示す。Gross らの熱力学データによると NaCrO<sub>2</sub> は高温でも存在するが、酸素濃度に依存し低酸素 (1 ~ 3 ppm) では不安定となり Cr<sub>23</sub>C<sub>6</sub> として存在する。高酸素量では Cr<sub>23</sub>C<sub>6</sub> は不安定となり(8)式の反応が提案された。



ここで Roy らはアルミナポートを使用し、1650 °C 真空中で Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> と CrO<sub>3</sub> を反応させて NaCrO<sub>2</sub> を合成し、その X 線回折による格子定数 (Table. 3 に示す) とナトリウム中より回収した Particulate の格子定数が一致したことより、ナトリウム中で NaCrO<sub>2</sub> が存在することを明かにした。また Ni の移行が酸素量に依存しなかったことから、Ni - Na - O 化合物は Na 中で安定には存在しない、という Gross らの考えが正しいことを明かにした。Fe は酸素量の影響をうけ Fe - Na - O 化合物が生成するといわれているが α Fe しか確認できなかった。熱力学的に Na<sub>4</sub>FeO<sub>3</sub> 生成には 1150 °F で約 1000

Table 2 Major Differences in Particulates as Determined by XRD Analysis (by P. Roy, et al.(6))

Location	Constituents	Low Oxygen (1-3 ppm)	High Oxygen (15-20 ppm)
Hot Leg (1290°F)	NaCrO <sub>2</sub>	None	Major
Cooler Impingement Samples (1100-1000°F)	Austenitic Phase	Major	Major
	NaCrO <sub>2</sub>	Minor	Major
	α Fe	Trace	Minor
	M <sub>23</sub> C <sub>6</sub>	Strong Minor	Trace
Filter Residue (600°F)	NaCrO <sub>2</sub>	Major	Major
	α Fe	None	None
	M <sub>23</sub> C <sub>6</sub>	Minor	Trace

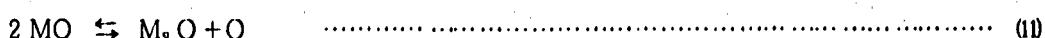
**Table 3** Structural Parameters of NaMO<sub>2</sub> Compounds  
Indexed as Hexagonal Cells (by P. Roy, et al. (6))

Compound	Lattice Parameters	
	$a_0$	$c_0$
$\alpha\text{-NaFeO}_2^*$	3.01 Å	15.93 Å
$\text{NaNiO}_2^*$ (High Temperature Modification)	2.96 Å	15.77 Å
$\text{NaCrO}_2^*$	2.96 Å	15.9 Å
$\text{NaCrO}_2$	$2.973 \pm 0.005$ Å	$15.964 \pm 0.005$ Å

\* Other Laboratory

ppmの酸素が必要である。Mnは高温部でステンレス鋼より選択溶出することが知られているが、低温のフィルター中には全く検出できず、上流の高温部に沈着したと考えられる。沈着物の結晶形態は温度に依存し、 $1100 \sim 1200^{\circ}\text{F}$ では明かな結晶構造（オーステナイト相、カーバイトおよび $\text{NaMO}_3$ ）を示したか、 $\sim 800^{\circ}\text{F}$ では結晶構造を示さなかった（ $\alpha\text{Fe}$ 生成）。流速プロファイルが沈着量に影響を与えることが知られているが沈着物の化学的性質は温度に依存すると考えられる。ホットレグでの沈着は沈着壁の合金成分の影響をうける。例えば、ホットレグが純Feの時はその上にCrとNiが多量に沈着し、ステンレス鋼の時は逆にCrとNiが溶出した。これよりホットレグではNa中のCrとNiは飽和していないことがわかる。沈着のメカニズムは原子交換と考えられ、そのDriving PotentialはNaと構成材との間の元素の活動度の差である。コールドレグでの沈着は沈着壁の組成に全く影響をうけず、そのdriving forceは元素の過飽和度である。

(7) Kolster ら (TNO) は腐食によって上流で酸素が消費されるため下流では酸素が少なくなり、腐食量がへる現象を下流効果と考え、彼らの試験データをもとに腐食量および酸素量を計算した。公称酸素量が 20 ppm であるにもかかわらず計算値が  $3 \times 10^{-4}$  ppm と少なかった理由として実際に腐食反応に関与する active あるいは free 酸素は全体の  $1/10^5$  であり、ナトリウム中で酸素含有化合物が free 酸素と  $100$  式のように化学平衡していると看えた。(酸素はほとんどが化合物として存在する)

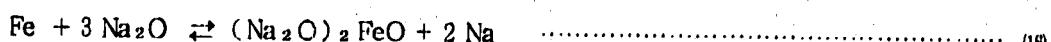
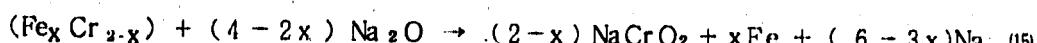
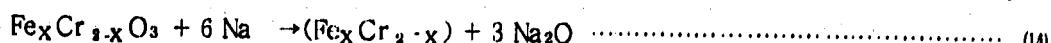


$$K = \frac{C(M_2O) \cdot C(O)}{C^2(MO)} \dots \dots \dots \quad (12)$$

(11)式の平衡定数は(12)式で表わせ、free 酸素量は(13)式になる。ここで腐食生成物は飽和状態にあると考えると free 酸素量は  $C(MO)$  の 2 乗に依存する。この  $MO$  の一例として  $NaCrO_4$  (真空蒸留-水溶解-NaOH 容量分析) が考えられ、 $NaCrO_4$  結晶を水溶解すると酸素はすべて  $NaOH$  の容量分析で求まることを確認している。

Tschudy ら (Ecole Supérieure de Chimie)<sup>(8)</sup> はガス状のナトリウムと  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  または  $\text{Na}_2\text{FeO}_4$  を  $350 \sim 525^\circ\text{C}$  で 120 時間以上加熱反応させ、熱重積分析により反応生成物として  $\text{NaFeO}_4$ ,  $\text{Na}_3\text{FeO}_3$ ,  $\text{Na}_{34}\text{Fe}_8\text{O}_{29}$  および  $\text{Na}_2\text{FeO}_4$  の存在を確認した。Fig. 3 は  $\text{Na}-\text{Fe}_2\text{O}_3$  系での生成物のは (モル分率 Fixed Na /  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) を加熱温度に対しプロットしたもので  $\text{Na}-\text{Fe}-\text{O}$  化合物の形態は温度によりかわるのがわかる。ここで Phase A は  $(\text{Na}_2\text{O})_2 \cdot \text{FeO}$  の X 線回折パターンと一致するが、その生成メカニズムは  $(\text{Na}_2\text{O})_2 \cdot \text{FeO}$  が純粋に得られない（他の研究者によても純粋な  $(\text{Na}_2\text{O})_2 \cdot \text{FeO}$  を得ることのみがなされたが失敗に終っている）のではっきりしなく、 $(\text{Na}_2\text{O})_2 \cdot \text{FeO}$  の存在にはまだ疑問があるとしている。

Charles (WH)<sup>(9)</sup> は  $\text{Fe}-\text{Cr}-\text{Na}-\text{O}$  に関する化学反応を熱磁気分析、X 線回折および SEM によりしらべた。 $\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{Cr}_2\text{O}_3$  を種々の割合で配合して作った  $\text{Fe}_x\text{Cr}_{2-x}\text{O}_3$  間溶体 10mg と Na 1g をアルミニナ管内で加熱し熱磁気分析した。Fig. 4 はその結果で、これらの曲線より次の反応が起ると考えた。



$x$  が大きい場合は  $\text{Fe}_x\text{Cr}_{2-x}$  は強磁性体であり、(14)式は Fig. 4 の  $350 \sim 450^\circ\text{C}$  における上昇部と対応し、(15)式は  $500 \sim 650^\circ\text{C}$  の上昇部（特に  $x = 0.8$  の時）に対応すると考えた。また  $x > 1$  の時、 $550^\circ\text{C}$  付近で減少がみられるがこれは(16)式のように Fe の減少のためであるとした。実際に、反応生成物の真空蒸留後の X 線回折および SEM 観察により(15)式の反応生成物である  $\alpha\text{Fe}$  と  $\text{NaCrO}_2$  を確認した。また、Ca のように Na より安定な酸化物を形成する元素が存在する場合は(17)式により  $\text{Na}_2\text{O}$  が減少するため Fig. 4 の点線 ( $x = 0.8$ ) のようになり(15)式は起らなくなる。



以上より腐食生成物は温度、 $\text{Fe}-\text{Cr}-\text{O}$  の組成および酸素ゲッターとなる共存元素の影響をうけることがわかる。

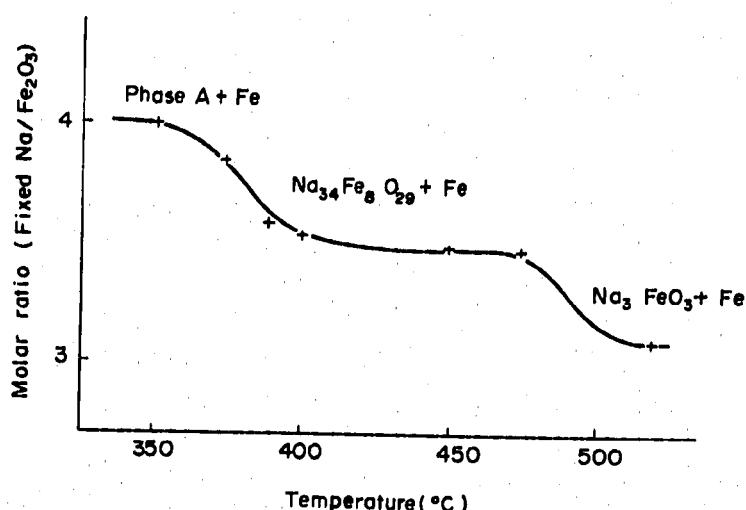


Fig. 3 Thermal Stability of Na-Fe Oxide (by A. Tschudy, et al. (8))

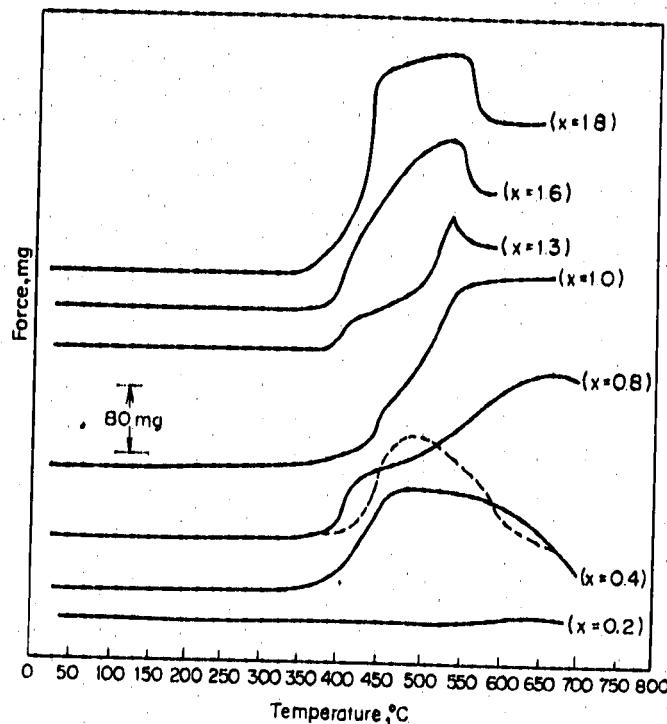


Fig. 4 Thermomagnetic heating curves for  $\text{Fe}_x\text{Cr}_{2-x}\text{O}_3$  solid solutions with large excesses of sodium

Claxton ら (Harwell)<sup>(10)</sup> は腐食生成物の特性についてしらべている。沈着物およびParticulate について次の点が問題とされる。

#### 沈着物

- (1) 平衡厚さ
- (2) 気孔率
- (3) 伝導率
- (4) 組成
- (5) 表面あらさ
- (6) 生成速度

#### Particulate

- (1) サイズ
- (2) 組成
- (3) 生成過程
- (4) 拡散係数

従来の研究はこのうち沈着物の厚さ、組成および生成速度、Particulate のサイズおよび組成に関するものがほとんどである。

Claxton は沈着物の厚みまたは気孔率が熱伝導率に及ぼす影響、沈着物の厚さ、表面あらさが流動圧損に及ぼす影響およびParticulate のサイズが質量移行量およびその過程に及ぼす影響について検討している。

Thorley (REML) らはナトリウム温度 425 ~ 675 °C、酸素量 25 ppm、レイノルズ数 ~  $10^5$ 、ナトリウム流速 13 fps (ある期間 20 fps) の小型ループに SUS 316 ステンレス鋼を 125 週浸漬し、X 線回折および XMA により腐食生成物をしらべた。彼らは試験後のループ表面を腐食領域（最高温部前後）

Neutral 領域（腐食領域の上流あるいは下流）および沈着領域（低温部）に分け、Neutral 領域では  $\text{NaCrO}_2$  の存在が支配的であり、低温部では  $\text{Na}_x(\text{Cr}, \text{Fe})\text{O}_y$  と  $(\text{Na}_2\text{O})_z \cdot \text{FeO}$  を確認した。また  $\text{FeO}$  の存在も確認した。これら酸化物の他炭化物の化学形についても X 線分析によって調べ、高温の腐食領域には  $\text{M}_{23}\text{C}_6$  と  $\text{M}_7\text{C}_3$  が、低温部には  $\text{M}_{23}\text{C}_6$  と  $\text{M}_7\text{C}_3$  が存在するのを確認している。彼らは一般的結論として次のことがらをあげている。

- (1) 沈着物の粒子径、形状および組成は試験条件がかわらなければ本質的に浸漬時間の影響をうけない。
- (2) 低温部の位置に関係なく大半の沈着物は約  $2 \mu\text{m}$  のフェライト粒子でその組成は 18-8 ステンレス鋼に似ている。
- (3) 低温部のある部分では内部酸化により沈着物が付着している表面で剥離が起る。
- (4) 沈着物の厚みは位置により異なり、最大  $250 \mu\text{m}$  であった。また密度は母材の  $1/3$  である。
- (5) 流速を上げると沈着物はより下流に移行する。
- (6) 大部分の沈着は小径の位置で起り、大径の位置（ループ配管を含む）での沈着は無視できる。
- (7) 沈着部の厚みには臨界値 ( $\sim 180 \mu\text{m}$ ) があり、これ以上になると流动ナトリウムにより機械的に剥離し下流に移行する。
- (8) 沈着部でも短期間は母材表面の構造変化が生じこれに沈着が依存するのでこの効果を消すため約 23 週以上の試験が必要である。
- (9) 沈着過程は境界層を介した移行ではなく沈着粒子の沈着壁への衝突 (impaction and sticking) と関係がある。レイノルズ数が高い程接線力により沈着粒子は材料壁に向って運動し衝突しやすくなり沈着する。  
（註）薄田ら（三菱重）は FBR 実機二次冷却系を模擬した  $380^\circ\text{C} \sim 550^\circ\text{C}$  のナトリウムループ（コールドトラップ  $180^\circ\text{C}$ ）に 3000 時間 SUS 304 を浸漬し、ホットレグに  $\text{M}_{23}\text{C}_6$ 、コールドレグに  $\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Si}$  の  $\text{Na}$  酸化物を確認した。

文 獻

- (1) G. W. Horsley, "Corrosion of Iron by Oxygen-Contaminated Sodium," J. of Iron and Steel Institute, Jan. (1956) "A Possible Galvanic Cell Method for Monitoring the Activity of Oxygen in a Hot-trapped Sodium Coolant Circuit," AERE-R3037, Nov. (1959)
- (2) W. H. Roberts, "Friction and Wear Behavior of Sliding Bearing Materials in Sodium Environments at Temperatures up to 600°C," TRG Report 1269(R), June (1966)
- (3) R. H. Hiltz, "The Corrosion of Stainless Steel in Oxygen Contaminated Sodium at 1200°F and 1400°F," Corrosion by Liquid Metals, Plenum Press, New York (1970) pp.63-79
- (4) S. A. Jansson, et al., "Oxidation-Reduction Reactions for Chromium and 304 Stainless Steel in Liquid Sodium," Corrosion by Liquid Metal, Plenum Press (1970) pp.479-513
- (5) P. Gross, et al., "Composition and Heat of Combination of a Double Oxide of Chromium and Sodium," J. Chem. Soc. (A) (1970) pp.1908-1913 "Composition and Heat of Combination of a Double Oxide of Iron and Sodium," J. Chem. Soc. (A) (1970) pp.1913-1916
- (6) P. Roy, et al., "Effects of Sodium Exposure on the Corrosion and Strength of Stainless Steels, Section 3 Corrosion and Mass Transfer," GEAP-10394, Aug. (1971)
- (7) B. H. Kolster, et al., "An Expression for Monometallic Corrosion Rate in Liquid Sodium," TNO Report L633-73-07 (10-2), Oct. (1971)
- (8) A. Tshudy, et al., "Contribution to the Study of the Corrosion Products of Iron by Sodium Containing Oxygen," Proceedings of the International Conference at Nottingham, April (1973) pp.209-212
- (9) R. G. Charles, "Reactions of Mixed Oxides of Iron and Chromium with Liquid Sodium," ibid., pp.213-218

- (10) K. T. Claxton, et al., "Effects of Corrosion Product Transport in Fast Reactors," *ibid.*, pp.289-300.
- (11) A. W. Thorley, et al., "Fission and Corrosion Product Behavior in Primary Circuits of LMFBR'S, A Status Review of Work Being Undertaken in the UK," Proceedings of IAEA Specialist Meeting at Dimitrovgrad, Sept. (1975)
- (12) 溝田寛, 他「高速炉用ステンレス鋼のNa中での腐食と強度」環境と強度, 日本金属学会, 日本国際学術振興会共催, 8月(1975) p. 7 - 10

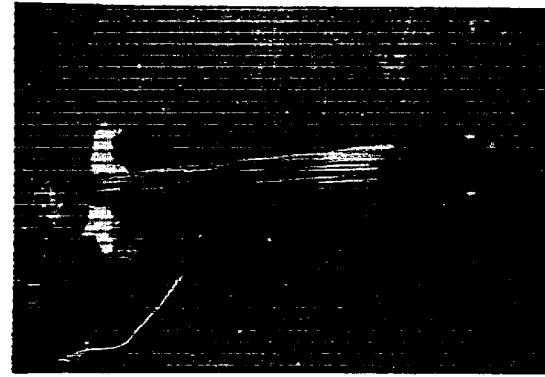
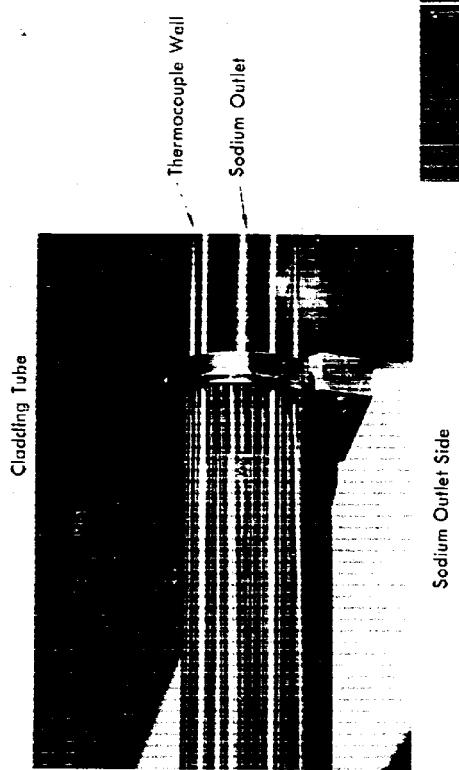
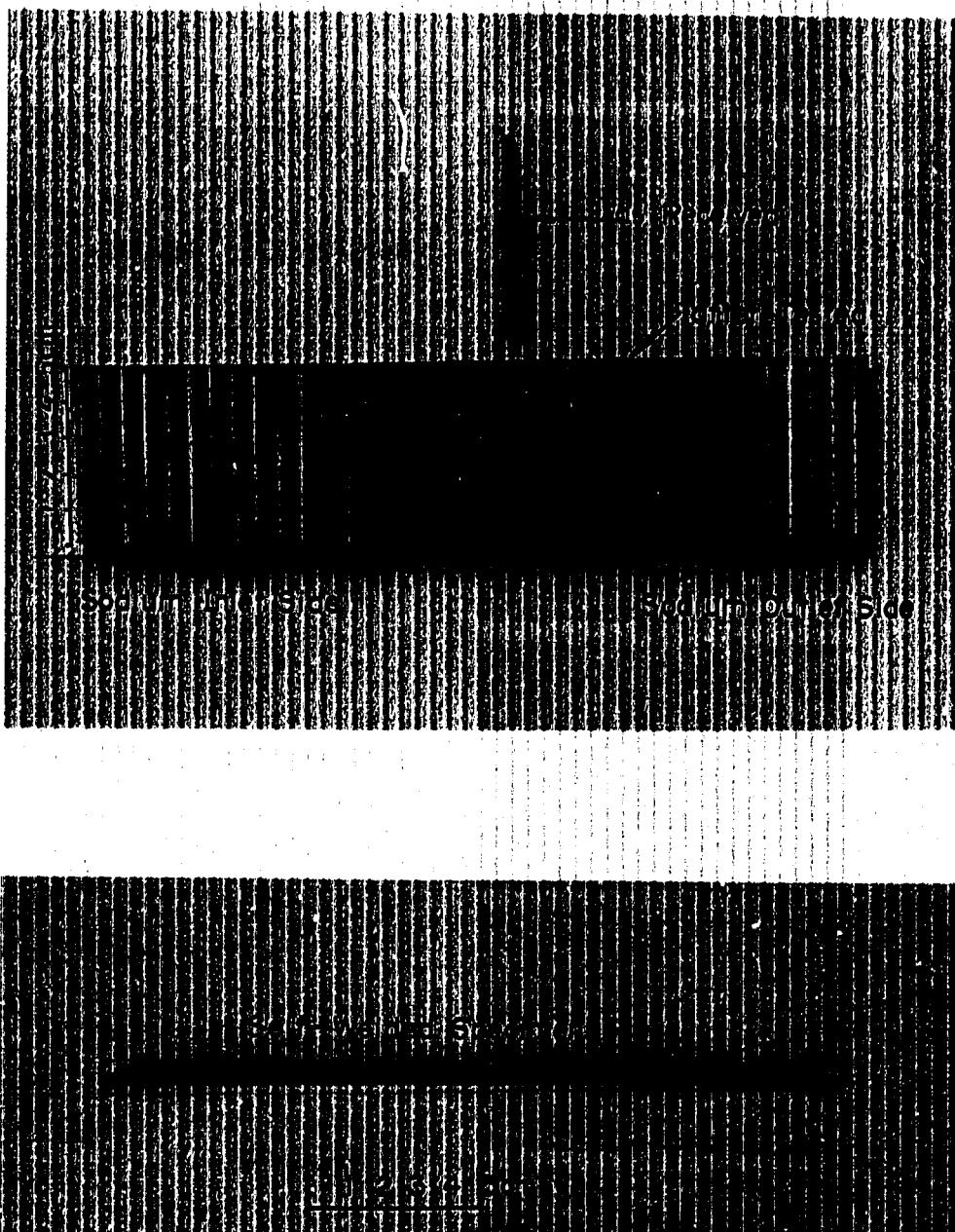


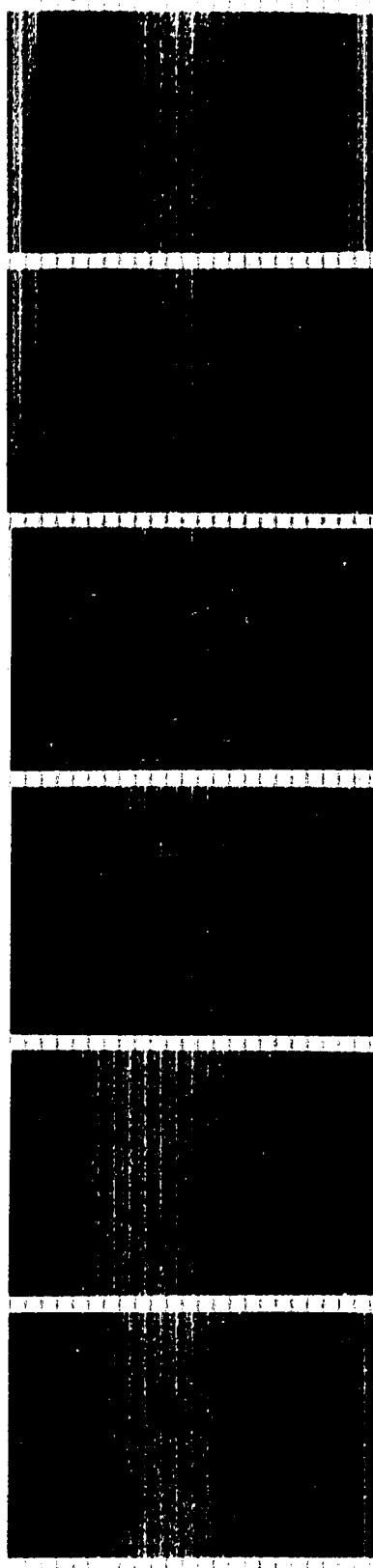
Photo. 1 External Appearance of Test Section before Tested.

Photo. 2 External Appearance of Test Section after Tested.



**Photo. 3 External Appearance of Cladding Tube Specimens**

Sodium Flow



No.1 (q-2), 430°C

No.9 (q-10), 483°C

No.20 (q-21), 554°C

No.29 (q-30), 614°C

No.32 (q-33), 633°C

No.36 (v-19), 659°C

X~8

1.3mm

Photo. 4 Stereographs of Cladding Tube Surfaces after Tested

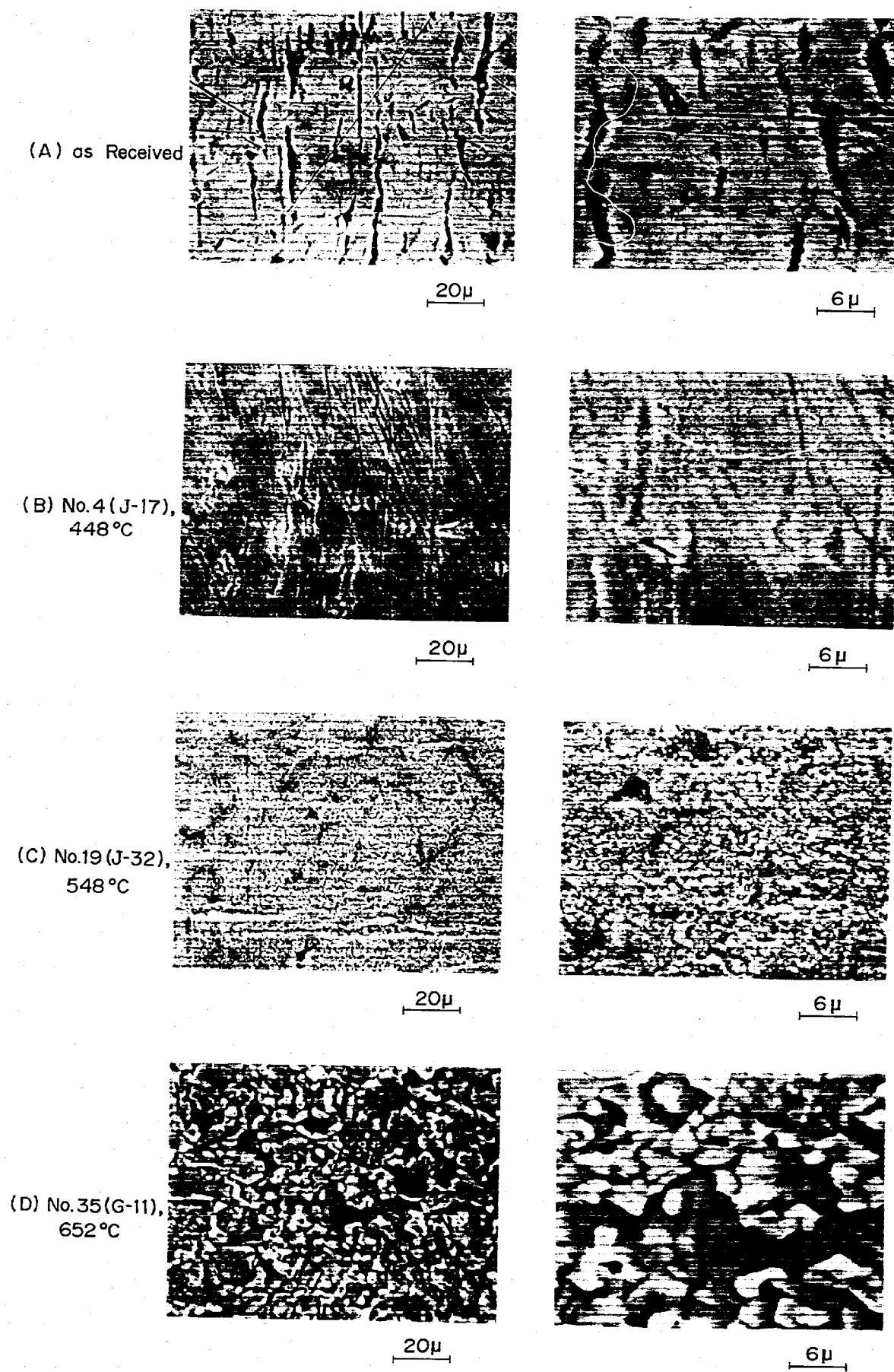
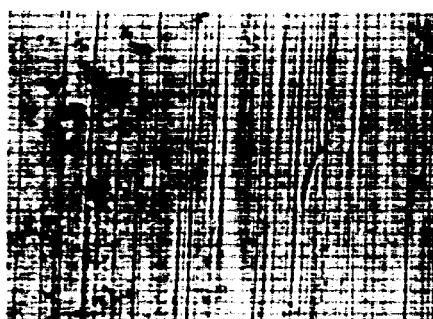
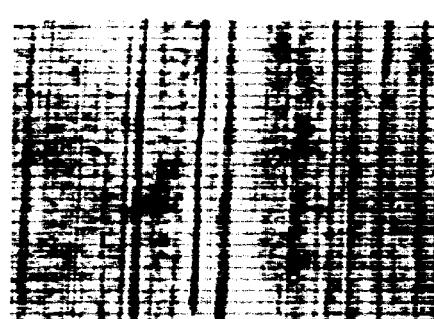


Photo. 5 Scanning Electron Probe Micrographs of  
S-II Tube

(A) as Received



20 $\mu$

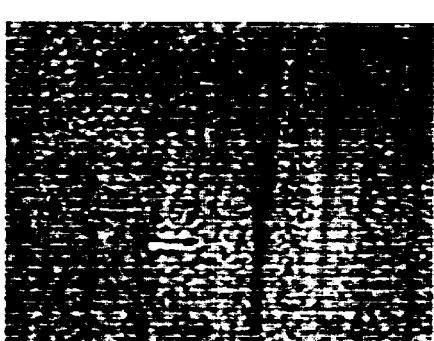


6 $\mu$

(B) 448 °C



20 $\mu$



6 $\mu$

(C) 548 °C

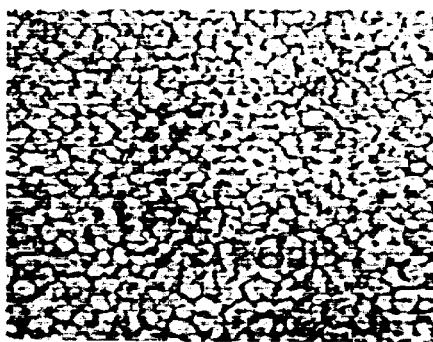


20 $\mu$

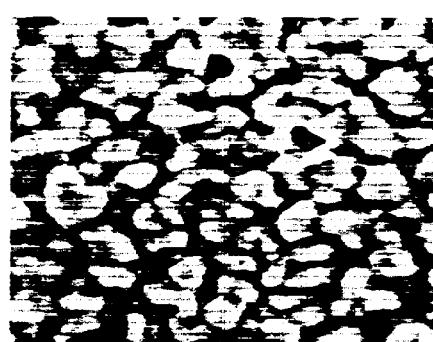


6 $\mu$

(D) 652 °C



20 $\mu$



6 $\mu$

Photo. 6 Scanning Electron Probe Micrographs of  
K-II

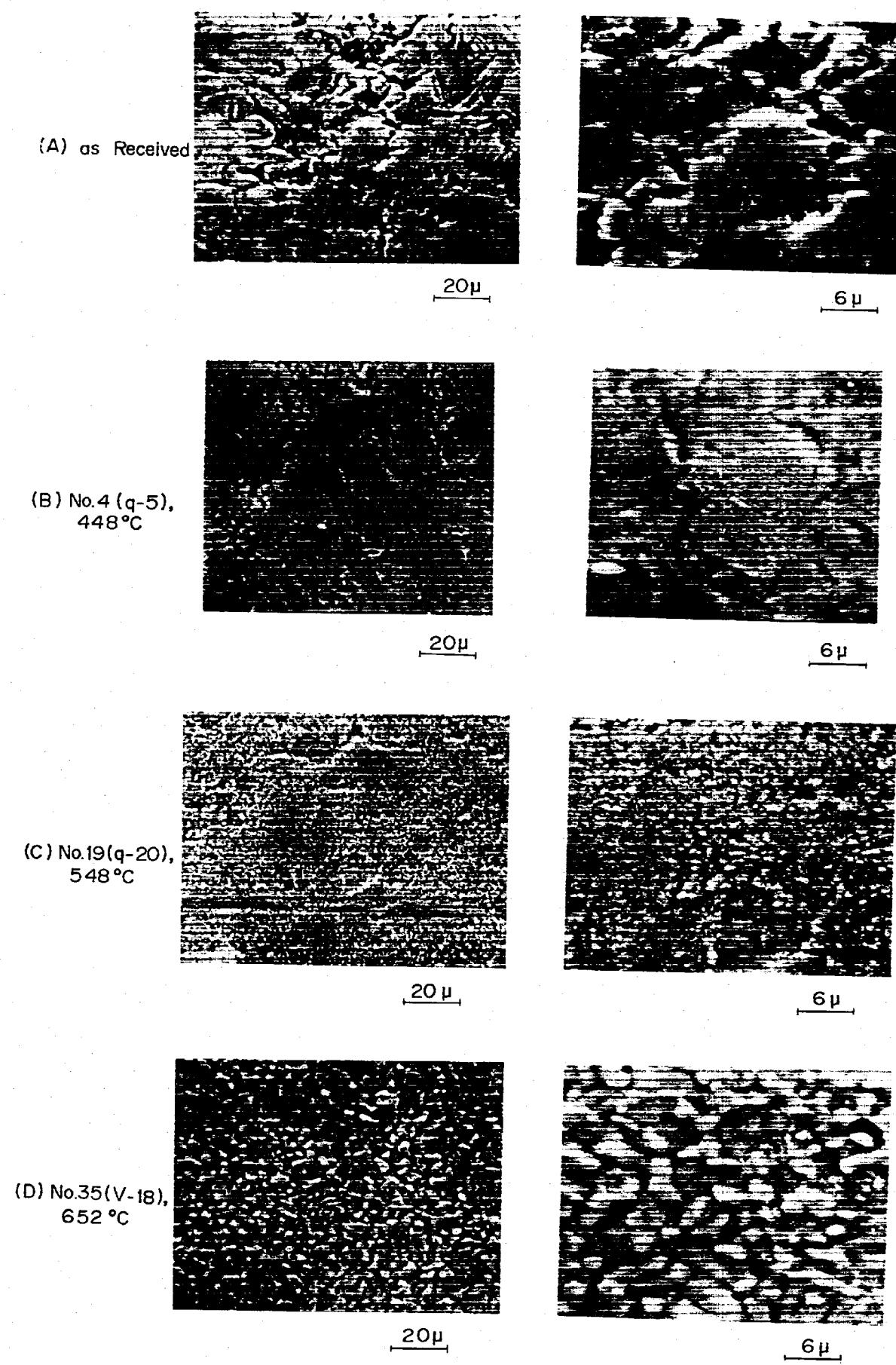
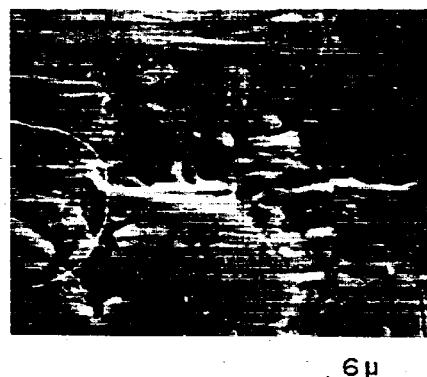


Photo. 7 Scanning Electron Probe Micrographs of  
S-III Tube

(A) as Received



(B) No.4 (K-4),  
448°C



20 $\mu$

(C) No.19 (K-21),  
548°C

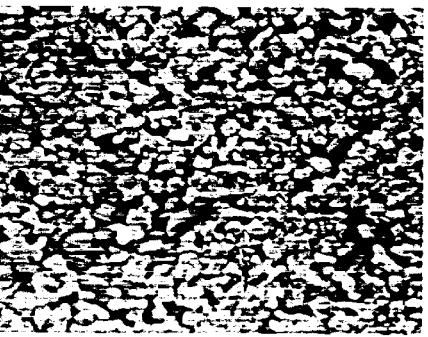


20 $\mu$



6 $\mu$

(D) No.35 (P-11),  
652°C



20 $\mu$



6 $\mu$

Photo. 8 Scanning Electron Probe Micrographs of  
K-III Tube

(A) as Received

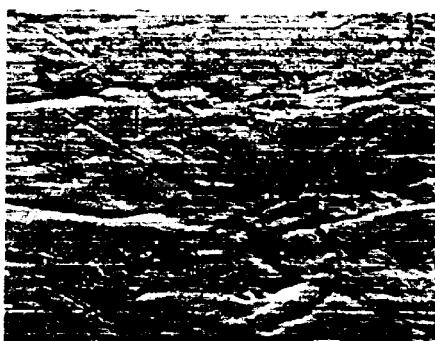


20  $\mu$



6  $\mu$

(B) 448 °C



20  $\mu$



6  $\mu$

(C) 548 °C



20  $\mu$



6  $\mu$

(D) 652 °C



20  $\mu$



6  $\mu$

Photo. 9 Scanning Electron Probe Micrographs of C. Tube

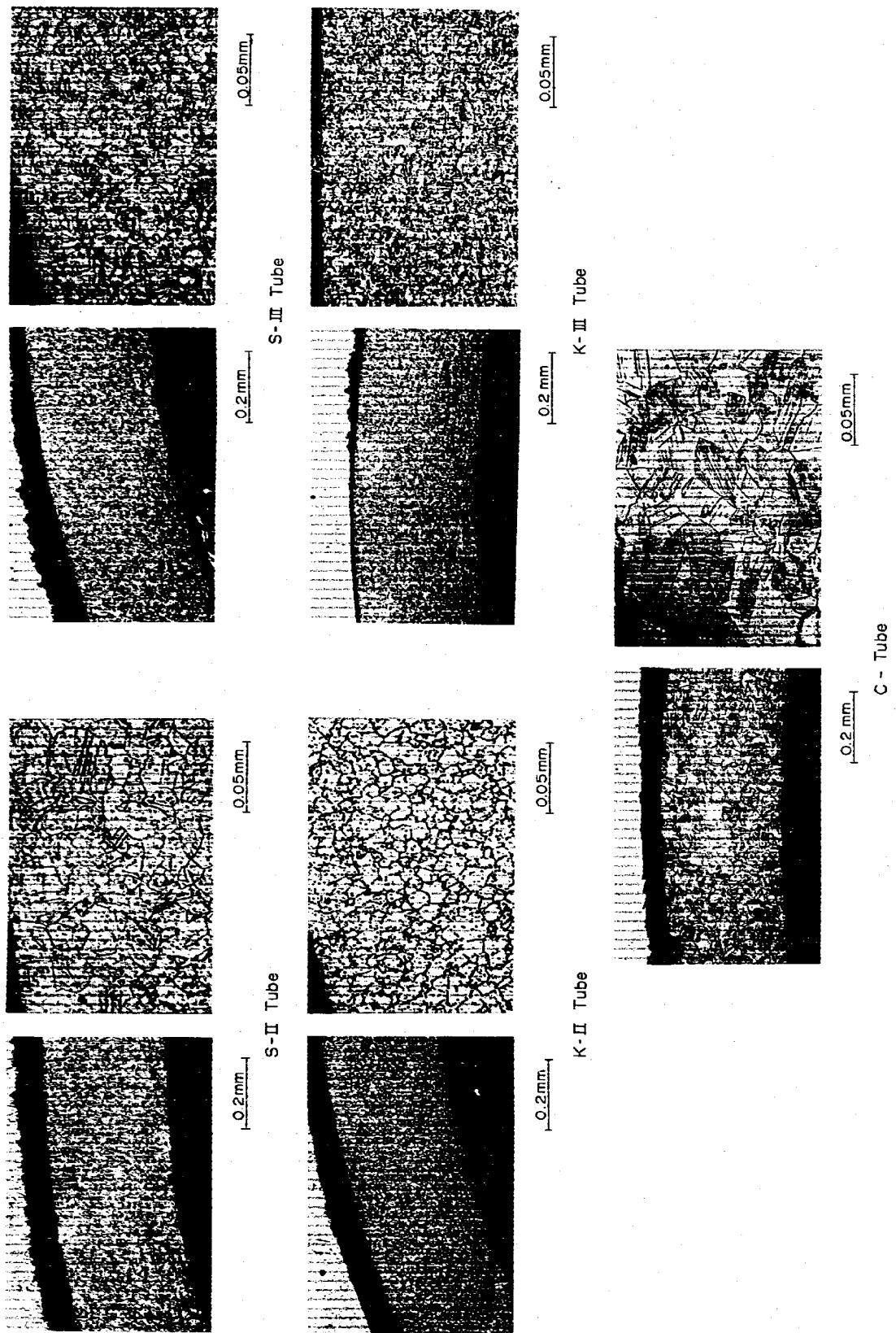
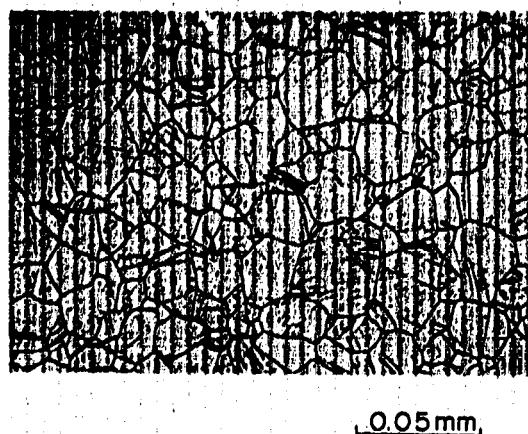
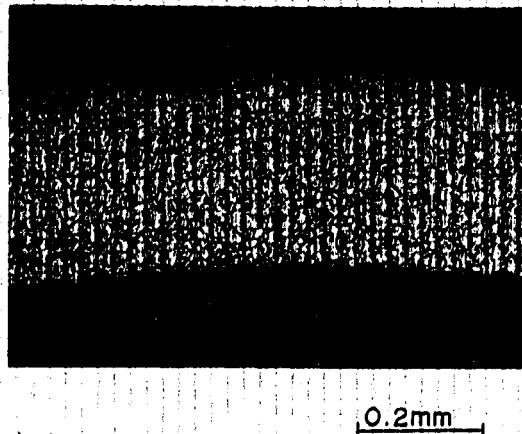
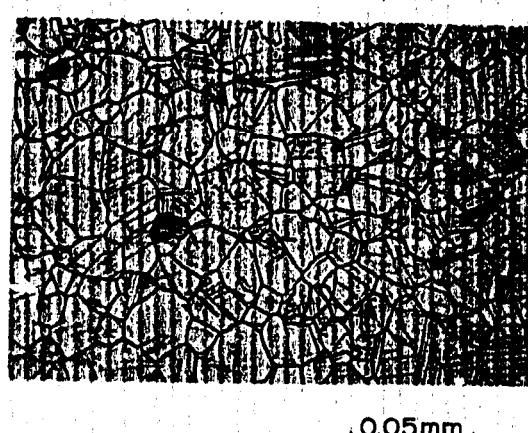
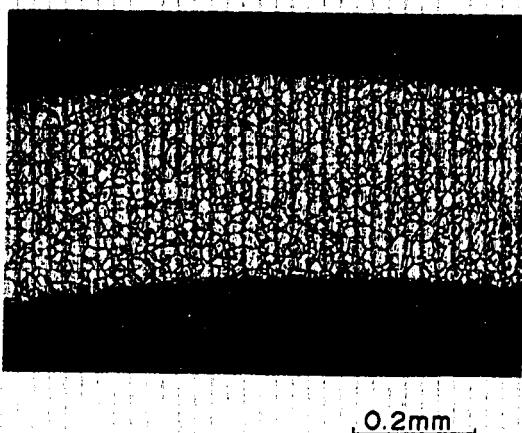


Photo. 10 Cross-Sectional Micrographs of Different Cladding Tubes as Received

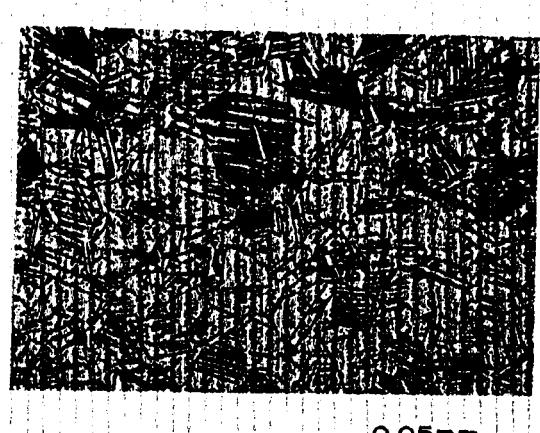
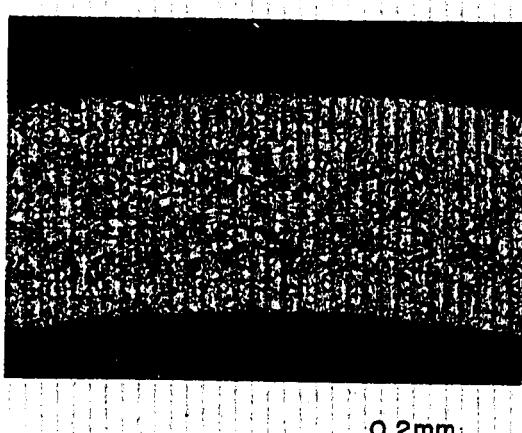
PNC TN941 76-17



No.4 (J-17) 448 °C

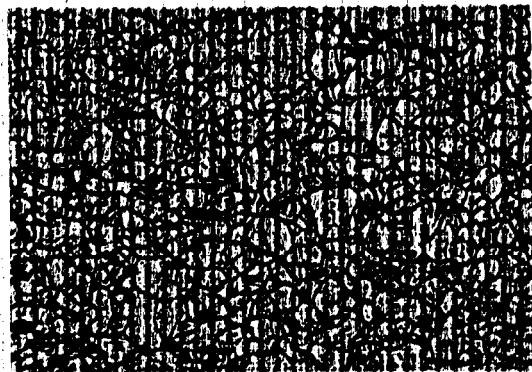
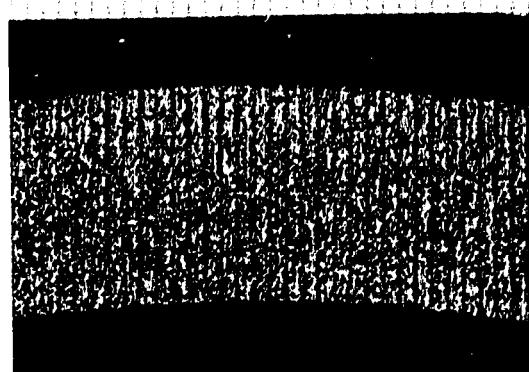


No.19 (J-32) 548 °C

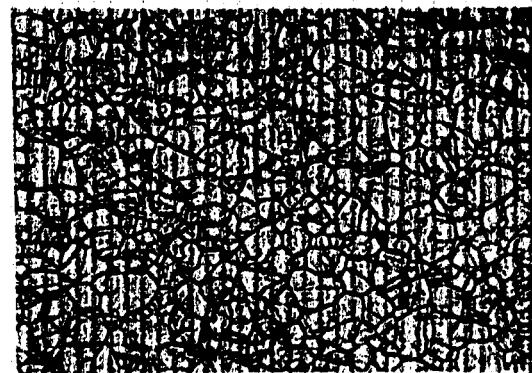
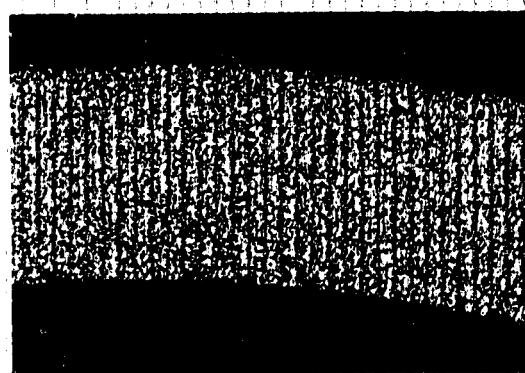


No.35 (G-11) 652 °C

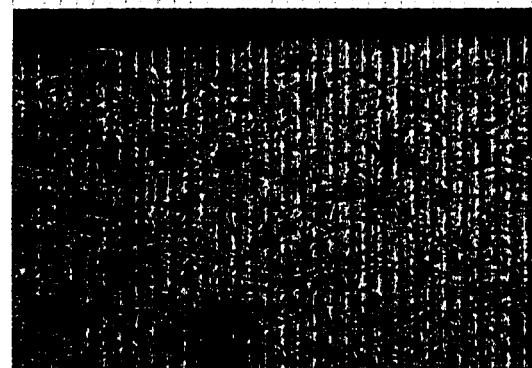
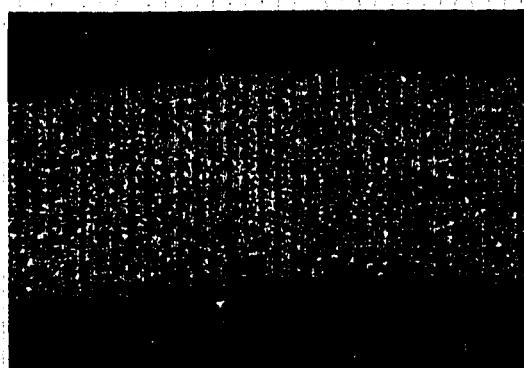
Photo. 11 Cross-Sectional Micrographs of S-II  
Tube after Tested



at 448°C



at 548°C

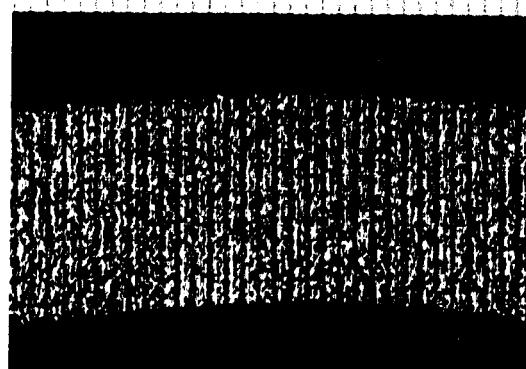


0.2mm

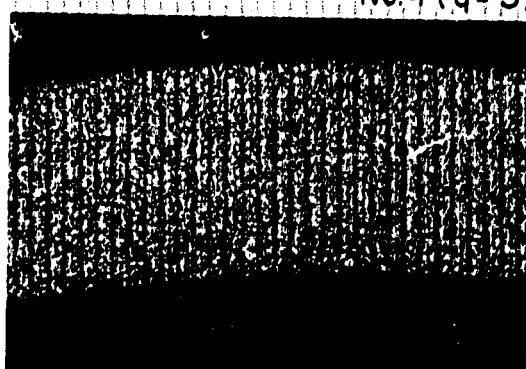
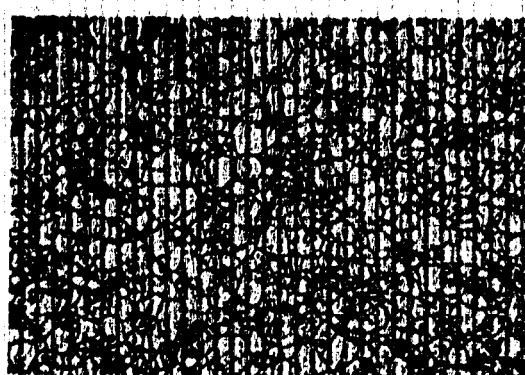
0.05mm

at 652°C

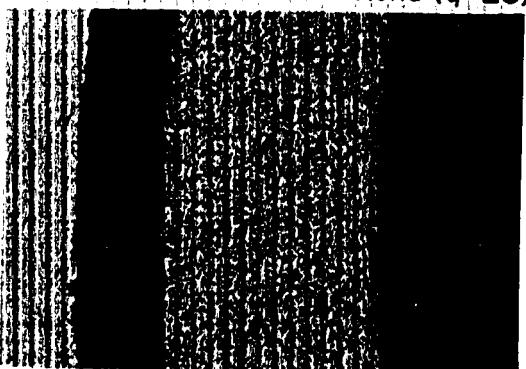
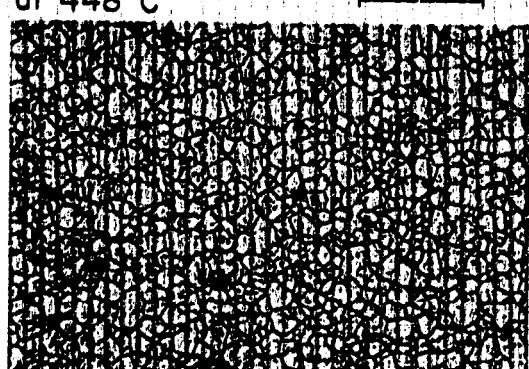
Photo. 12 Cross-Sectional Micrographs of K-II  
Tube after Tested



No.4 (q-5), at 448 °C



No.19 (q-20), at 548 °C

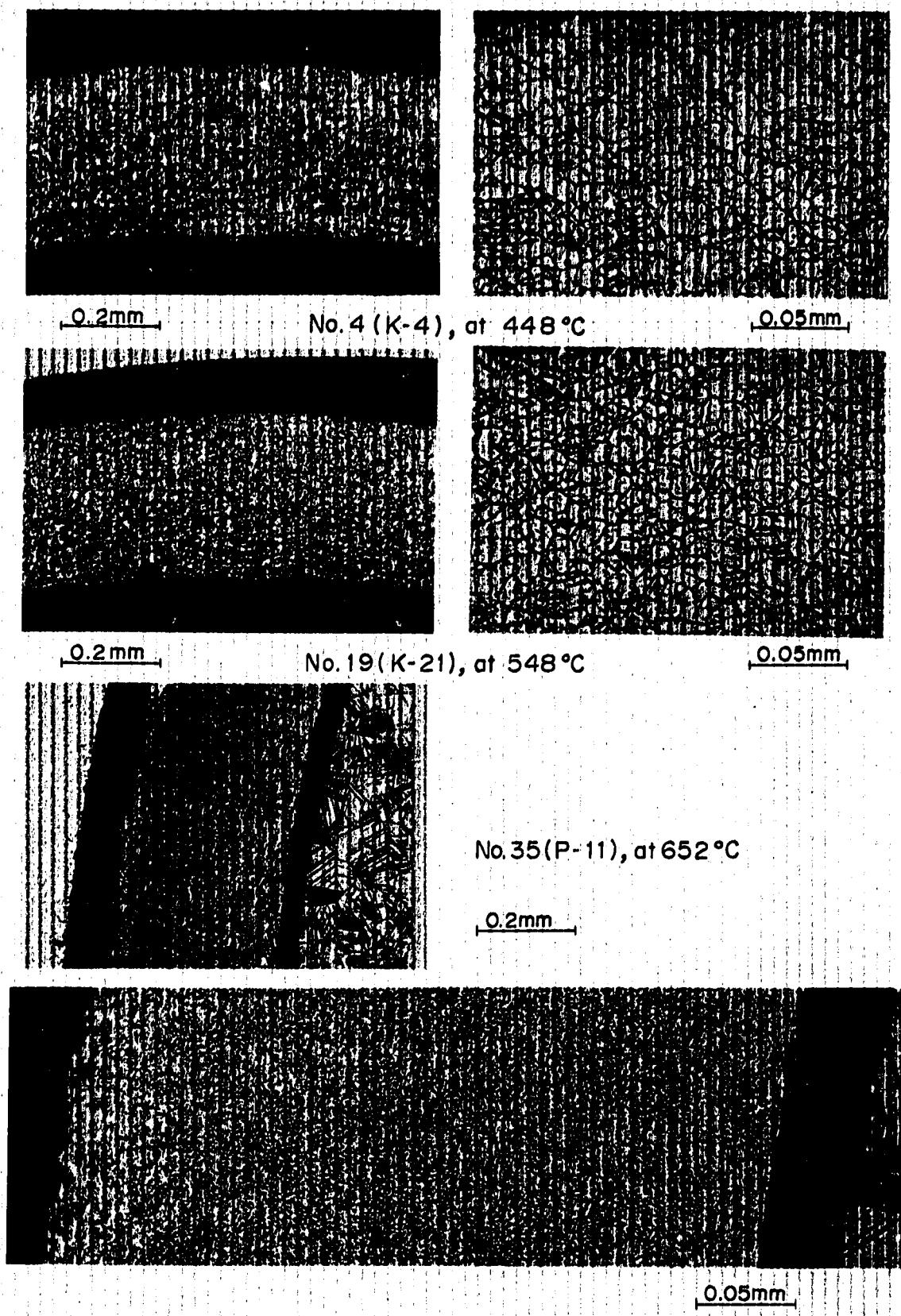


No.35(V-18), at 652 °C

0.2mm



Photo. 13 Cross-Sectional Micrographs of S-III  
Tube after Tested



**Photo. 14** Cross-Sectional Micrographs of K-III  
Tube after Tested

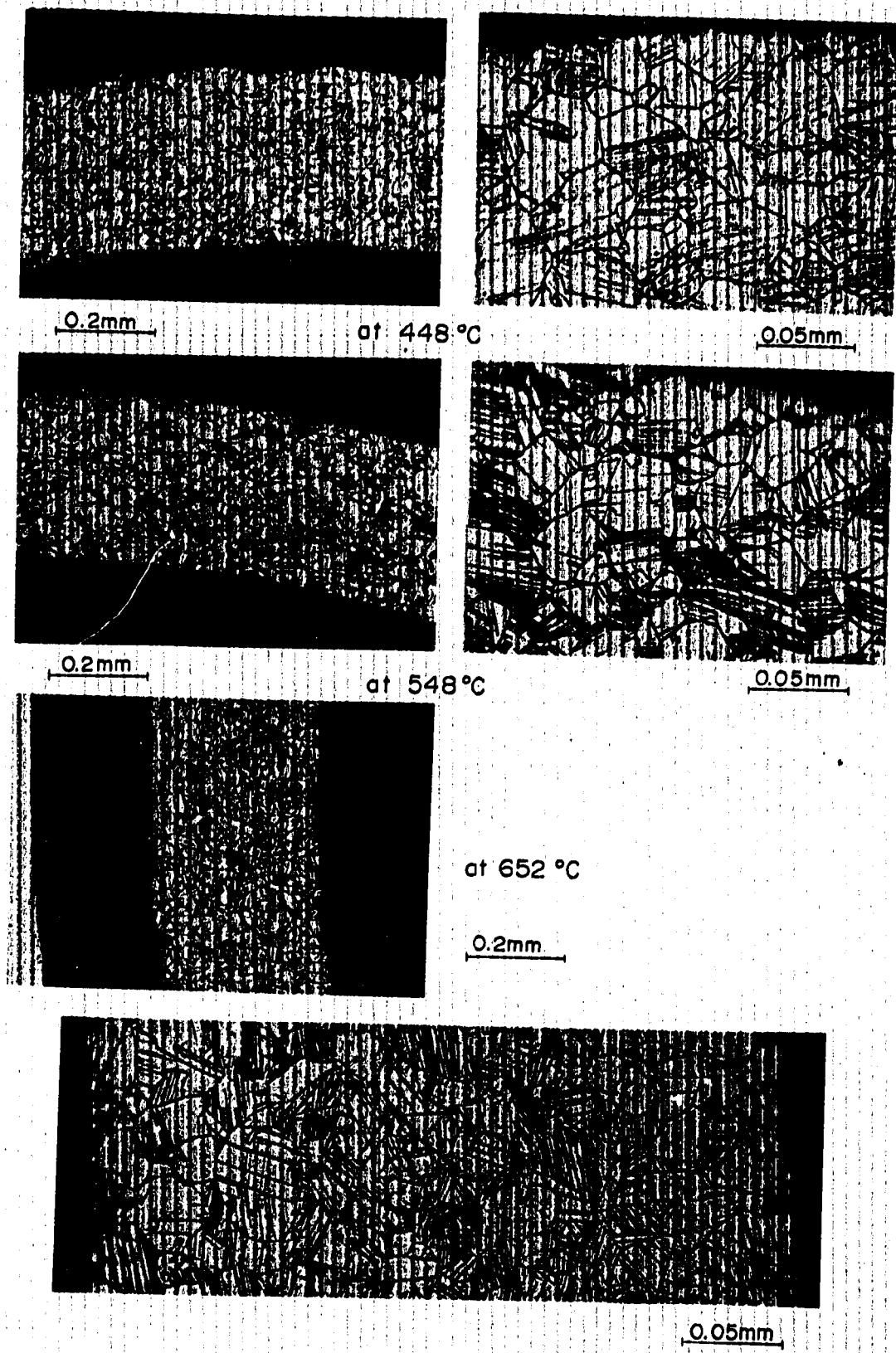
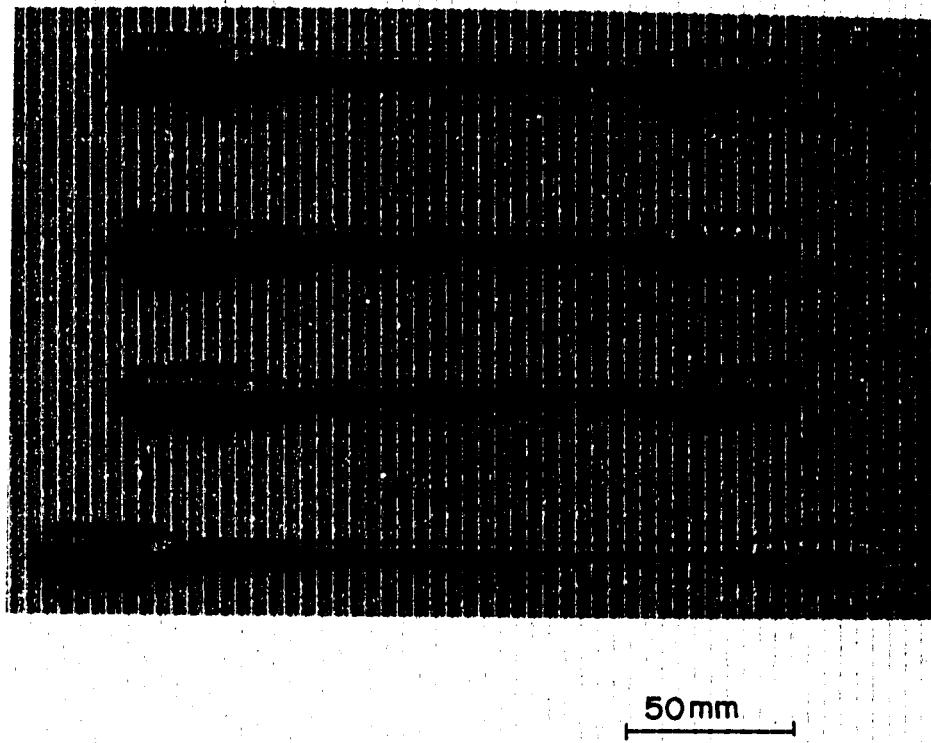
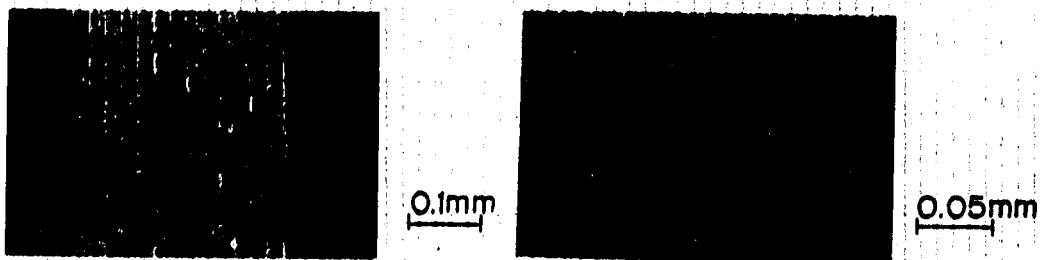


Photo. 15 Cross-Sectional Micrographs of C  
Tube after Tested

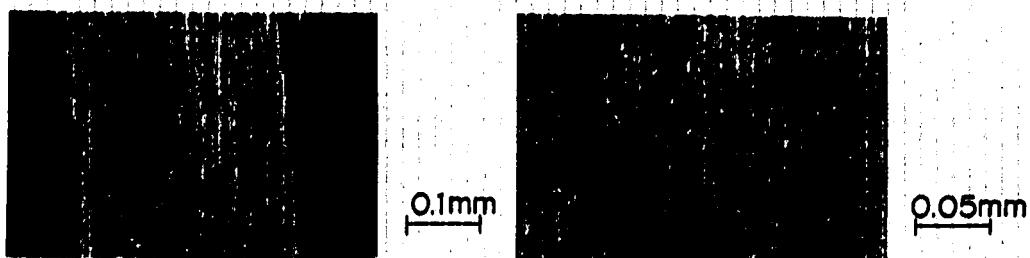


**Photo. 16 Tensile Test Specimens of Self-Welded Cladding Tube**

(A) No.32 (K-34), after Tested at 636°C



(B) No.33 (O-34), after Tested at 643°C



(C) No.35 (P-14), after Tested at 656°C



(D) No.35(P-2), after Tested at 656°C

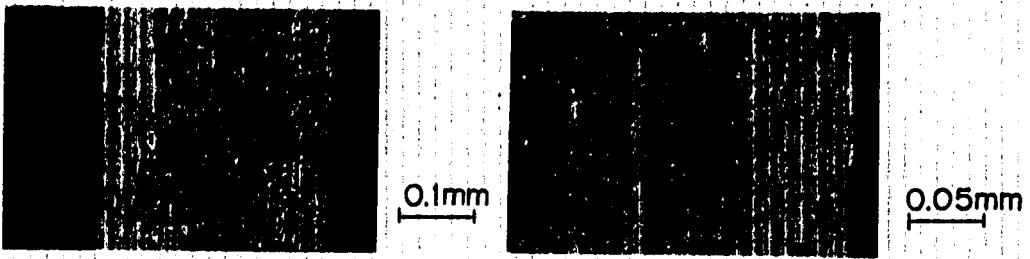
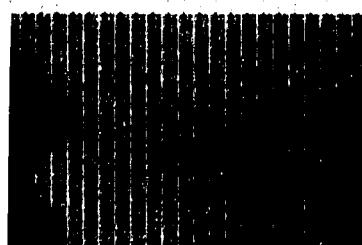


Photo. 17. Self-Welded Surface after Tensile Test



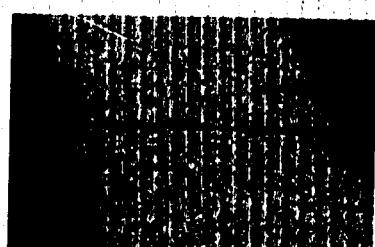
0.2mm



No.33(K-35)

Self-Welded Surface  
after Tested at 643°C

No. 34 (P-1 )



0.2mm



0.1mm

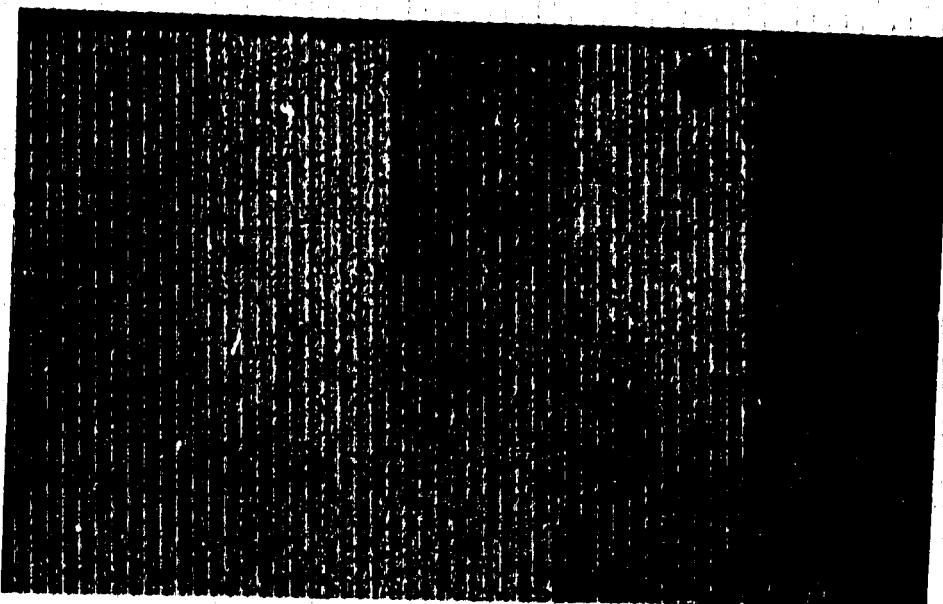


0.05mm



0.025mm

Photo. 18 Cross-Sectional Micrographs of  
Self-Welded Surface



538

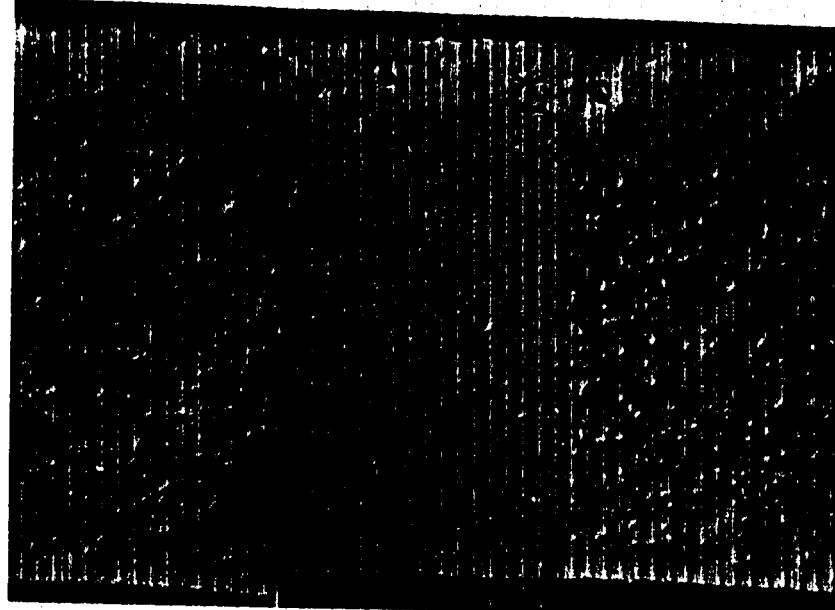
1768

4838

10352

15726

**Photo. 19** Type 316 Stainless Steel Exposed to Flowing Sodium at 704°C for the Times Shown (in Hours) (by D.W. Sandusky, et al.(28))



316

321

347

**Photo. 20** Nomarski Contrast of Stainless Steel Exposed to Flowing Sodium for 15726 H. at 704°C (by D.W. Sandusky, et al.(28))