18. サーマルサイクリング試験装置とウランによる 二、三の実験結果について

ウラン燃料要素に関する研究, (1)

武 谷 清 昭*

Thermal Cycling Equipment and Its Experimental Data upon Uranium

Studies on uranium fuel element, (1)

By K. TAKETANI

Woosher type thermal cycling equipment are designed and constructed in June 1957. In Japan, however, it is difficult to make it to be as same as ANL Woosher type equipment due to poorer NaK technique. Therefore, evacuated silica capsules containing uranium specimens made by grooved mill rolling at 600° and 300°C, respectively, are used in this thermal cycling equipment. Cycling was performed between room temperature and 550°C up to 1,000 cycles in maximum and the thermal cycling growth coefficients are measured at the three stages shown in Table 2. From this experiment, the uranium rod rolled at 300°C was always found to have higher thermal cycling growth coefficient than the rod made at 600°C irrespective of the holding time at room and elevated temperature. The effects of rolling temperature of uranium rods on the thermal cycling growth coefficient are also described. The specimens after 1,000 cycles are metallographically examined and sub-grains having crystal orientation of 2 or 3 degrees different from each other are observed. This experiment is one of the surveying test to find the best fuel element for JRR-3 reactor in which natural uranium is to be used as fissile material.

緒 論

金属ウランが原子炉の燃料として使用される場合には、ウランの結晶学的異方性のために、サーマルサイクリング効果が認められ、早くからこれについて論じられている。その後このサーマルサイクリング効果の現象論的取扱いは多く発表されているが、さらに最近では A. A. Bochvar らによって等方性の金属においてすらこの効果が認められ注目されている⁽¹⁾。筆者はこれらの点に注目してサーマルサイクリング効果についての実験を行なうために Woosher 式のサーマルサイクリング装置⁽²⁾を1957年6月に設計試作し、これを用いて圧延ウラン棒を試料として二・三の実験を行なった結果について報告する。

I. サーマルサイクリング装置

Woosher式サーマルサイクリング装置は高温およ

び低温の炉の間を試料が自動的に上下する機構になっていて、この場合に試料への熱の伝達を容易にするために NaK を使用している。しかし現在わが国においては NaK の技術が十分開発されていないので、Plate 1 に見られるように装置の系全体を真空にした。このサーマルサイクリング装置 TCE-1 (Thermal Cycling Equipment) は 前述の点以外ほぼ Woosher 式と大差ないと推定される設計を行なった。

すなわちこの装置を大別すると、真空炉部分と制御部分とに二分される。制御部分は上下の炉を一定に保つ装置、温度記録装置、保持時間制御装置などから成り立っている。真空炉部分は上下の一定温度の炉、真空系および試料駆動装置から成り立っている。上下の炉はそれぞれ 0°~800°C, 0°~400°C の範囲で温度を一定にすることができる。中央に石英管が垂直に通

* 日本原子力研究所 (Japan Atomic Energy Res. Inst.)

Plate. 1 Thermal cycling equipment (TCE-I)

ていて、この中を試料を挿入したステンレス鋼製の網籠容器が移送するようになっている。この移送は最上部の可変駆動モーターによって行なわれる。上下加熱炉の間には上下石英管を透明石英ガラス製の継手で連絡しており、この窓を通じて試料の上下が観察できるようになっている。下部の炉は冷却を目的とするので、冷却用のパイプを通してある。繰返し加熱冷却を受ける試料容器はヘッド内のケーブル巻枠から繰り出されるステンレスケーブルに吊ってある。さらにこの巻枠が駆動モーターと連絡自在のシャフトによってつながれていて、時限リレーによって所定の時間の保持を上下の各炉に行なった後自動的に行なう。移動時間はモーターによって5秒から15分の間に变化できる。試料容器の上下における保持時間は上記の駆動モーターの運転を時限リレーによって制御して30秒から30分の間の範囲にわたって任意に調整できるようになって

Fig. 1 Thermal cycling growth coefficients of rolled uranium

いる。真空炉部分の真空は拡散ポンプ、ブースター、ロータリーポンプから成っていて、到達真空度は 10^{-4} mmHg 程度であり、さらに場合によってはアルゴンその他のガス雰囲気においても操作できるようになっている。制御盤には6点記録計と1点記録計があり、上下の炉の温度と試料の温度とが自記されるようになっている。

しかし、このサーマルサイクリング装置では試料の温度をサイクリング中に測定できないこと、真空系全体を長時間運転すること、および試料の冷却が急速にできないことなどが欠点であるということが運転の後にはっきりしたので、試料をそれぞれ真空にしたシリカのキャプセルに入れる方法に改めた。試料を 10^{-4} mmHg 程度の中でシリカ中に封入し、さらにチタンの酸化による脱ガス作用を作用してキャプセルをつくり酸化を防止した。また低温側の炉はとり除いて試料が降下した時には扇風機によって冷却させることにした。試料の温度測定にはダミーのキャプセル中に試料と同一形状のアルミニウム片を入れ、その中に熱電対を挿入してステンレス試料容器とともに上下させ、これ移送にともなって温度の測定ができるようにした。これを常時1点記録指示計に入れて測定し、記録紙からサイクル回数、サイクル状況の検査確認を行なった。度数計は時限リレーと電氣的に接続してあって自動的にサイクル数も指示される。なお1点記録計によるサイクルの温度-時間曲線の一例を Plate 2 に示してある。

Plate 2 Temperature-time curves of the thermal cycling equipment

II. 試料および実験方法

試料に供したウランはフランスのカルシウム還元によって製造されたもので、Table 1 に示すような分析値のものである。これを 5 kW の真空融解炉によって融解し、次にこれを 25 mmφ × 150 mm 程度のインゴットに鑄造し、さらに皮むきしてから 30 HP の溝ロールによって圧延して丸棒をえた。この圧延工程は、

のとおりである。まず 25 mmφ のウランインゴットを皮むきして 23 mmφ にして、これを 600°C 1 時間焼ナマシして鑄造ひずみを除いた後 square パスだけで粗圧延して 12 mm 角まで圧下した。ここで加工ひずみを除くためにさらに 600°C 1 時間の焼ナマシを行なった後に試料を二分した。その一部は 300°C の仕上圧延を行なって 10 mmφ のウラン丸棒を作り、さらに他の一部は 600°C で仕上圧延を行なって 10 mmφ にした。この場合に 300°C 仕上圧延の試料の方が仕上り表面は美しいものであった。

Table 1 Chemical analysis of uranium used (ppm)

B	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Si
0.1	7	<20	34	4	22	80

このようにしてえた加工工程の異なる 2 種類のウラン試料を外径 15.2 mm, 内径 12.4 mm のシリカ管の中に、先に述べたような方法によって、1 個ずつ封入してサーマルサイクリングの試料とした。

このシリカ管に入った 300°C 仕上圧延と 600°C 仕上圧延の試料 2 種のキャプセルと前述のダミー測温用キャプセルとの計 3 個をステンレス移送用網籠に入れた。ここに報告するサーマルサイクリング実験は 2 つの異なった条件、すなわち高温と低温の保持時間が異なる場合についてのものである。サーマルサイクリングの低温側は室温で扇風機による冷却を行ない、高温側は 550°C に電気炉を保った。高温側および低温側の保持時間は第 1 回目のサイクリングには高温 15 分—室温 10 分とし、第 2 回目には高温 10 分—室温 10 分とした。この 2 つの条件で、いずれもサイクル数が 1,000

回になるまで行なった。このサイクリングの途中 200 回または 300 回と 500 回においてサーマルサイクル成長率 G_t をシリカキャプセルの外から測定し、1,000 回の場合には G_t を実測した。

この 1,000 回サイクルを行なった試料のサイクル前後のマイクロビッカーズ硬さを測定した。また通常使用されるエチレングレコール—りん酸—エチルアルコールの食刻液⁽³⁾を用いてサイクル前後の顕微鏡写真の撮影を行なった。なお 1,000 回サイクルさせた後の試料の変形状態の写真も撮影し、Plate 4 に示してある。

III. 実験結果と考察

サーマルサイクル数とそれによる成長率 G_t との関係の測定結果を Table 2 に示してある。

Table 2 Thermal cycling growth coefficients of rolled uranium specimens

Specimen Number of cycles	15~10min holding		10~10min holding	
	600°C rolled	300°C rolled	600°C rolled	300°C rolled
200	372	483	—	—
300	—	—	219	261
500	416	705	334	487
1,000	432	755	363	523

これからはっきりしたことは 300°C 圧延のウラン棒の G_t の方が 600°C 圧延のウラン棒の G_t よりもいずれのサイクリング条件の実験でも大きい値を示していることである。Table 2 に見られるように G_t の値はサイクルの回数の増加にともなって増大するが、1,000 回程度となるとほぼ飽和の傾向を示している。サーマルサイクリングによる金属ウランの成長機構に関しては Burke と Turkalo の理論⁽⁴⁾ を応用して説明されているが、これを適用すると Table 2 に示されるような高温保持時間の短い実験試料の方が G_t が小さいという事実は説明されうるのである。すなわち試料が加熱されていく間に、熱膨張の異方性によって結晶粒に加えられた応力は高温加熱の間に緩和されたり、結晶粒界移動をおこしたりすると考えられるが、熱サイクル試験の時の加熱時間くらいでもこの緩和作用は十分おこるものと考えられる。したがって、それにつづく冷却によっておこる逆方向の応力の作用が高温保持時間の長い方が大きくなる結果となる。そして室温における応力の緩和の状況はわずかな差はあっても両者ともほぼ等しいと考えてよいと思われる。

同じ保持時間の条件では、550°C 10 分—室温 10 分の

場合でも、550°C 15分—室温 10分の場合でも、いずれも 300°C 仕上圧延の試料の方が G_c の値が大きい。この場合試料の移送時間は同一であるので効果として差異のないものと考えられる。300°C 仕上圧延の試料の方が筆者の実験結果においても $\{010\}$ 繊維組織の発達が顕著であり、デラトメーターによる測定結果からも長さ方向に負の膨脹係数を持っていて、しかも 1 回の加熱冷却後の残留伸びは正の熱膨脹係数を持った 600°C 仕上圧延のウランの試料よりも大きいという特徴がある。これらの点はすでに発表された報文⁽⁹⁾からも容易に予想されるところであるが、現在のところ 300°C および 600°C 仕上圧延のウラン試料の繊維組織については十分な測定結果をまだえていないので、これらの点については後に報告する。

Plate 3 から見られるとおり、300°C 仕上圧延と 600°C 仕上圧延のウラン試料には、1,000 サイクル後に、圧延方向に細長いクラックが入っているのが認められた。この原因については、ウラン・インゴットを鋳造した場合のクラックあるいはヒケが残存していたためとも考えられるし、あるいはウランの異方性のためにその後の圧延工程中に成長してウラン棒全体にわたるヘヤークラックの原因になったとも考えられ、さらには Square-oval 溝による圧延方式であるため、溝ロールによる圧延中にウラン棒の角の表面酸化膜を巻き込んだためであるかもしれない。しかし以上述べたいずれの原因であるかは現在のところではウラン・インゴットの超高波あるいは渦電流による非破壊検査を行な

っていないので明確に定めがたい。

Table 2 から見られるとおり、サイクル回数による G_c の変化の様子は初期サイクル回数時において急速に増加する。これによって結晶の微細化がおこるが、これはある程度以上は進まないという現象をとまなっていると考えられる。Plate 4 にも見られるとおり、サーマルサイクリングによってサイクリング前のそれぞれの加工組織の微細化が起っているが、このサーマルサイクリング後の結晶の微細化は亜結晶の発達によると考えられる。偏光顕微鏡写真の中には黒化度のきわめてわずかに異なった亜結晶がある群をなして集まっているのがみえるが、この濃度の相違による亜結晶粒の方位の相違は 2° よりも大きくないとされている。しかし実際には写真で同じ色調にみえる領域内にもさらに細かい亜結晶が実存しているとも考えられる。

1,000 回のサーマルサイクリング後の顕微鏡写真からみて、試料にはピンホール状のものが存在することが特徴であるが、これが比重の減少の原因の一つであろうと推定される。またこれにともなうマイクロピッカー硬さの変化を測定した結果を Table 3 に示してある。

Table 3 Vickers-hardness of specimens

	Before cycling	After 1,000 cycles
Rolled at 300°C	255.7	201.7
Rolled at 600°C	249.6	202.5

Plate 3 Thermal cycled specimens

IV. 総 括

金属ウラン試料に対するサーマルサイクリング効果を研究する目的で、Whoosher 式サーマルサイクリング装置を試作したので本報ではこの装置の説明を行なった。またこの装置をつくったのはきわめて基本的な JRR-3 の燃料要素の out-pile test を行なう目的であるが、その簡単な survey test およびこの Whoosher 式サーマルサイクリング装置による実験結果は、わが国で最初のものであり、それが従来諸外国において発表されている実験結果と基本的に一致するか否かを確認することも本実験の目的の一つである。これらのことをまとめてみると、

(1) Declassified された報告からできる限りの推定を行なって、Whoosher 式サーマ

Plate 4 Microstructures of thermal cycled specimens ($\times 75$)

ルサイクリング装置の構造および電気回路を設計し、試作した。

(2) ANL ではこの装置に NaK および Dowtherm を使用して試料に対する熱伝導率を改良しており、高温保持部および低温保持部の特性をきわめてよくしているが、わが国では NaK の技術がないために、当初はその部分をすべて真空にするという方法を採用した。

(3) しかしこの真空系を完全に長時間運転することは、真空系機械のためのみならず、わが国では実験を行なう状況が適当でない場合が多いので、これ

を改良してアルゴンを流す方式を採用した。しかしこれにはきわめて純粋なアルゴンの入手が困難で、流れてゆくアルゴン中の微量の酸素のために、試料が酸化して粉末化し実験が困難になるので、最後にシリカキャプセル方式を採用した。

(4) この Whoosher 式サーマルサイクリング装置の電気的、機械的および熱的特性は実験を施行するのに支障がなかった。

(5) 溝ロールによる 300°C 仕上圧延のウラン試料と 600°C 仕上圧延のそれとのサーマルサイクリング成長率 G_t を比較すると、その熱的条件の如何に

かわらず前者の方が大きい。さらに熱的条件としては、低温保持時間が同一でも高温保持時間が長い方が、応力の緩和あるいは粒界移動のために G_i の値が増大する。ウラン棒状試料の α -相内でのデラトメーターによる測定曲線と G_i との関係については興味ある問題があるので、この点を解明する目的でサーマルサイクルデラトメーター装置 TCE-2 を新たに設計製作し目下実験中である。

(6) 1,000 回のサーマルサイクルを行なったウラン試料には、加工組織中の結晶粒の亜結晶化による微細化がおこっている。これにともなう硬さの変化も測定した。

(7) 以上の実験結果から G_i の値がえられた。この値は JRR-3 燃料要素の out-pile survey test の測定結果になるが、これはウラン丸棒試料の製造条件あるいは熱処理条件と大きな関係があるから、この試料の繊維組織による G_i 特性の裏付けを行なう必要がある。この点については G. E. の Diffractometer を入手し、現在反射法による繊維構造測定中であるので、これとデラトメーター測定結果、偏光顕微鏡写真その他から総合して JRR-3 燃料要素のウラン丸棒の製造条件の決定を行なう予定である。またこの第1期のサーマルサイクリング装置を含めた JRR-3 燃料要素の survey test では総合的にほぼ順当な結果をえたので、現在前記の G_i に対して変数となる試料の熱処理条件を広範囲に変えて、 G_i に対する熱処理効果の影響をスクリーンする実

験を実施中である。

(8) この実験に使用したウラン地金はフランス製であるために、今後わが国の JRR-3 燃料要素に使われるものと異なり、この点には問題があるが、この実験の目的には合致すると思われる。実用する地金による実験については、諸条件が整ってから行なう予定である。

なお試料の測定その他をサーマルサイクリング中に行なえるように改良した TCE-2 を目下試運転中でありこれに関しては近々報告の予定である。

この実験を遂行するに当って常にいろいろと協力いただいた佐々木吉方氏および実施いただいた鹿志村悟氏に対しここに深く感謝の意を表わす次第である。なおこの実験装置は当初東京大学工学部総合試験所三島研究室にあり、三島良績助教授その他の方々の御援助いただいたことを深く感謝する。

(1959年 7月7日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) A. A. BOCHVAR, *et. al* : *Second United Nations International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy*, A, Conf. 15, 2190(1958).
- (2) R. M. MAFIELD, *et al.* : ANL-4848, (1953).
- (3) R. F. DICKERSON : TID-5076, (1952).
- (4) J. E. BURKE, *et al.* : *Trans. of AIME*, **194**, 651 (1952).
- (5) F. G. FOOTE : *Nuclear Metallurgy*, **1**, 65 (1955).