U と 2SAL と の 関 連 変 形 に つ い て *

笹 川 雅 信** 薄 井 洸** 川 崎 正 之**

On the Deformation in 2S Aluminium Related to the Behaviours of Uranium under Thermal Cycling

by

Masanobu SASAGAWA, Akira USUI and Masayuki KAWASAKI
(Japan Atomic Energy Research Institute)

The authors have investigated two fundamental experiments on the deformation behaviours of the aluminium sheath which might be restricted by the uranium fuel core, for example, as the combination of the uranium rod and the aluminium sheath used for the fuel element of JRR-3 type reactor.

The first experiment was studied for the stress behaviours and the micro structure changes *etc.* of extruded 2S aluminium which was subjected to the same length changes as that of β -quenched uranium under the thermal cycling between 110° and 550°C. In this case, the experiment was done under the condition separated the uranium rod and the aluminium sheath from each other.

The second one was studied to clarify the systematic deformation behaviour of the aluminium caused by the thermal growth of the uranium for reference to the first results, and then the experiments carried out for the repeated strain cyclic tests with the growth of constant rate of five kinds in the tensile direction only, that is, 0, 0.020, 0.037, 0.053 and 0.074 per cent per cycle, respectively.

In these experiments, the strain cyclic amplitude, the test temperature of 2S aluminium and time per cycle was about 0.59 per cent strain, 75°C and 27.5 min., respectively.

The testing machine used was “the universal thermal fatigue testing machine” which was designed by the authors.

The outline of the experimental results was as follows:

The effect of the growth was clarified to accelerate the local deformation of 2S aluminium from these results, and consequently the fatigue life decreases with increase of the growth rate per cycle, and the relation between the growth rate per cycle and the logarithm of cycles to failure was approximately presented by a straight line.

The degree of softening and hardening to be caused by strain cycles with the growth and the time for softening and hardening depended upon large or small of the growth rate per cycle. Furthermore, it was defined from the point of view of the microstructure behaviour that the changes of microstructure due to progress of the deformation follow the same process in spite of large or small of the growth rate per cycle, but the progress rate of the microstructure change becomes late with decrease of the growth rate per cycle. That is, it depends apparently upon the number of various deformation bands and their forms.

The experiments showed that the growth and the strain cycle have the reversal effect on the changes in strength each other, and this opposite phenomenon was explained from the point of view of the microstructure changes between the repeated strain cycle and the simple tension.

(Received Dec. 22, 1962)

1. 緒 言

周知のように、多くの原子炉燃料要素は燃料のしん材(棒、管、板)とそれを保護し、核分裂生成物の外部への飛散、汚染等を防止するための被覆材とから成り

* 原稿受付 昭和37年12月22日, 当協会第5回高温強度シンポジウムにて講演(昭37.10)

** 日本原子力研究所

たっている。被覆材はその外側を流れる液体または気体の冷却材にしん材からの発生熱を伝える。したがってしん材と被覆材との接着の良否は伝熱上重要な問題の一つであり、使用中のしん材の挙動に応じて被覆材がいかに関連変化するか、その組織変化、変形あるいは破損等について研究しておくことは、燃料の使用限界ならびに安全性からも大切な項目である。被覆材と燃料しん材との接着形式は燃料要素の種類、使用条件等によって決定されるが、われわれは JRR-3 型式の燃料要素のように、しん材として天然ウラン棒、被覆材としてアルミニウム管が機械的に接着された場合について両者の関連変形につき基礎的な実験を行なった。

天然ウランは中性子による照射損傷、および原子炉の始動、停止または運転中に発生する温度変動による熱膨張の変化以外に、熱膨張の結晶学的異方性のために熱成長という特異な変形現象を示し、その結果著しい体積変化を起こす場合がある。したがって、ウランしん材に接着被覆されている剛性の低いアルミニウム被覆材は当然このしん材の変化に順応した変形をすることが考えられる。

2. 実験方法および供試材

実験はしん材と被覆材とが一体に接着されている実際の燃料要素の形態で、使用状態の温度分布にあり、かつ照射下における関連変形について行なうことが望ましいが、不可能なため、ここでは天然ウラン棒が熱サイクルによって示す長さ方向の寸法変化のみに基づくアルミニウム棒の変形に限定して実験し、半径方向の膨張、収縮また照射損傷等による変化は考慮していない。したがって天然ウラン棒とアルミニウム棒とをそれぞれ別々に使用し、天然ウラン棒を熱サイクルさせた際の長さ変化を忠実にアルミニウム棒に伝え、これによって生ずるアルミニウム棒の応力、組織変化および変形等を測定し検討した。そこで、まず代表例として熱成長が少ないと思われる β -焼き入れしたウラン棒とアルミニウム棒との関連変形についての一例を示し、さらにこの結果を参考にし、天然ウランの熱成長を考慮した実験を系統的に行なうため、単純な一定率成長を付加したひずみ繰返試験に拡張して、被覆材としてのアルミニウムの成長による変形現象について実験した。

関連変形の実験は以前試作した熱疲労試験機を使用し、試験機のひずみ時間制御と同期させた加熱炉をもつ熱膨張計に天然ウラン棒を入れ、上限 550°C 、下限 110°C の温度範囲で繰返速度 27.5 分/回の熱サイクルを与えた。また、その際発生した長さ変化を 75°C の一定温度に保持したアルミニウム棒試験片に伝えるため、レバーを使用して機械的に試験機の伸び検出用差

動変圧器に与えた。この場合、差動変圧器の変化が常に零になるように試験機の伸び設定器を設定しておく、伸び検出器に与えられた天然ウラン棒の伸長および収縮による長さ変化を零に消去するまでアルミニウム試験片の標点間に引張り、または圧縮力が働き、ウランの変形に基づくアルミニウムの関連変形現象を測定することができる。このようにして天然ウランに熱サイクルを与えた場合にアルミニウムに発生する応力、組織変化およびウランの伸び、温度変化を測定した。

次に、アルミニウムに一定割合の成長を付加しつつ引張りおよび圧縮によるひずみ繰返しを与える試験は同上の試験機で β 焼き入れ後、 α 焼きなまししたウランにつき、その平均熱膨張係数として $13 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ の値をとり、これが $100 \rightleftharpoons 550^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で熱サイクルしたと仮定した際の熱ひずみ約 0.59% のひずみ繰返しに対して、ウランの熱成長の代わりに単純な引張方向、すなわちウランの伸長のみに相当する熱成長を 1 サイクルあたり 0, 0.020, 0.037, 0.053, 0.074% の 5 種類を仮定して付加した場合について行なった。なお、アルミニウムの試験温度、繰返時間は前試験と同じである。

実験に使用した天然ウランはフランス製の地金を溶解、鋳造後、直径 70 mm の丸棒に仕上げ、直径 15 mm まで 600°C でみぞロール圧延し、 720°C に 10 分保持後水焼き入れ(いわゆる β -焼き入れ)して、直径 8 mm、長さ 50 mm の試験片に加工した。また、アルミニウム試験片は市販の直径 15 mm の押し出し材から平行部の直径 10 mm 標点距離 50 mm に機械仕上げしたもので、実験にはすべて押出状態のままを使用し、1 実験に対し 2 本づつ行なった。アルミニウム試験片は試験前に硝酸とアルコールの混合液で電解研磨した後使用し、また、連続ひずみ繰返用試験片とは別に検鏡用試験片を使用して各繰返し後取り出し検鏡し、同一試験片を連続して検鏡に使用した。

3. 実験結果

(I) 関連変形試験

Fig. 1 は β -焼き入れしたウラン棒を $110 \rightleftharpoons 550^{\circ}\text{C}$ の熱サイクルさせた際に発生するウラン棒の熱膨張による伸びと、それに伴いアルミニウムに拘束発生する応力との関係を示したものであり、応力変化については 2 および 150 サイクル時について示されている。この場合に生ずるウランの伸びは毎回約 0.58% で、平均熱膨張にして約 $13 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ の値になる。ウランが 110°C から温度上昇し約 365°C になると 75°C のアルミニウムは弾性限界約 6 kg/mm^2 に達し、その際の伸びは約 0.3% となる。さらに温度が上昇すると、アルミニウムは降伏し塑性変形が起こる。この場合、同時

にクリープによる変形も起こる。ウランが最高温度を経て降下すると、逆にアルミニウムにはしだいに圧縮応力が働きウランが 320°C 付近、約 0.34% の圧縮でアルミニウムには降伏 (約 6 kg/mm^2) が始まって変形し、ウランの最低温度 110°C で 8.4 kg/mm^2 の圧縮応力を経て次のサイクルに移る。この場合、ウランの試料温度は表面で測定しているため、内部との温度差の影響が応力、伸びの時間的おくれとなって発生している。150 サイクル時では引張りおよび圧縮側とも応力は低下し、引張側の降伏温度とその伸びはそれぞれ 315°C と 0.23% でその応力は 3.5 kg/mm^2 である。以上の結果から、サイクルの進行は被覆材アルミニウムの降伏温度を低下せしめる。すなわち、150 サイクル後には約 50°C 低下し、変形が促進される傾向を示している。したがって、しん材ウランの使用温度をアルミニウムの弾性範囲の温度に押えれば、さらに長期にわたる使用に耐えうるものと考えられる。Fig. 2 は Fig. 1 と同一実験結果で、アルミニウムに発生する引張りと圧縮側応力の最高値ならびにウランの熱成長率とサイクル数との関係を示す。すなわち、40 サイクル付近まで応力値は急激し、その後はほぼ一定値を示すようになる。このような応力変化は試料が強加工材のために塑性変形を受けて起こる応力回復による軟化現象と考えられ、一方、組織的にはまず応力集中部に少量の軸に垂直な、しわ変形が現われ、40 サイクル後には肉眼的にまで発達する。それと同時に軸に 45° 方向

の弱いリュードース帯が発生し、約 60 サイクル後には応力集中部全体にわたって互いに 45° 方向に交差したリュードース帯が発生する。この場合に少量の応力低下が認められる。さらに繰返数が増し変形が進むと、しわ、すべりおよびリュードース帯の数と大きさが増し、かつ熱成長の影響による局部変形が促進される。割れの発生は軸方向に垂直なしわ変形から起こる。ウランの熱成長は初め収縮し、60 サイクル付近で約 0.31% の最高収縮量を示し、それ以後は逆に伸長し、150 サイクル後には約 0.65% の伸長を示した。以上の結果から関連変形試験はアルミニウムに対してウランの熱成長を付加した場合のひずみ繰返試験に類似しているのがわかる。

(II) 成長を付加したひずみ繰返試験

すでに述べた理由と方法により単純な成長を付加したひずみ繰返試験を行ない、成長による変形現象の影響について実験を行なった。Fig. 3 に一定速度の成長を付加したひずみ繰返試験の簡単な関係を模型的に図示した。Fig. 4 は 1 サイクルあたり約 0.074% の成長を付加した場合の応力、伸びおよび成長との関係を示したもので、矢印は成長を示している。2 サイクル時の引張側の弾性限は約 0.3% の伸び、 8.3 kg/mm^2 の応力で、圧縮側は 0.27% の収縮、 4.2 kg/mm^2 の応

Fig. 1 Restricted stress cycles of aluminium subjected to the same strain variations as that of β -quenched uranium under thermal cycling

- (1) Stress variations in aluminum at 2nd and 150th strain cycles, respectively
- (2) Temperature variations of uranium in each cycle
- (3) Strain variations of both metals

Fig. 2 Changes in stress amplitude of aluminium due to the same cyclic strain as that of β -quenched uranium under thermal cycling

Fig. 3 Schematic illustration of repeated strain cycling with growth of constant rate

力となり、降伏を過ぎるとクリープを伴う変形をする。この際の応力値、また特に圧縮側の応力曲線等が Fig. 1 に比べて違うのは繰返ひずみ量と成長の方向ならびにその量が違うためと考えられ、その他、伸びの時間的おくれが少ない等の点を考慮すると Fig. 1 の変形現象に似た傾向を示している。

本実験のように比較的大きな成長を付加し、かつ加工状態の試料を使用する場合には、特に変形による局部収縮が著しいため真の応力を求める方法として、試験片の最大収縮部の直径を刃状測定部をもつダイヤルゲージで 1/100 mm まで測定し、そこに全荷重が集中すると仮定して計算した。しかし、伸びは標点間に発生する全伸びを採用した。Fig. 5 はこのようにして測定した真の応力とサイクル数との関係を 5 種類の成長

Fig. 4 Stress variations of aluminium subjected to repeated strain cycling at 75°C with growth of 0.020% per cycle. (Strain amplitude is 0.59%) Curves are correspond to 2nd and 70th cycles respectively

を付加された 0.59% ひずみ繰返試験の場合について示した。図中の点線はひずみ繰返し中に付加された成長率を示している。初期応力が試料によって若干異なるため応力曲線は上下しているが、この応力差を考慮すると、成長率零の場合を除き成長率の大きいほど応力の低下は少なく、全体に高い応力値による変形を示している。また、サイクルの初期に応力は減少し、平坦部を経た後増加するが、減少から増加に移る時期は成長率の大きいほど早い。しかし、成長率零の場合には漸減一方の傾向を示し、硬化現象を示さずに割れが発生する。

次に、以上の応力変化と組織変化との関連についての代表例として、成長率零の場合 (Photo. 1) と成長率の小さい 0.02% (Photo. 2) および一番大きい 0.074% (Photo. 3) の各サイクル後の組織変化をそれぞれの写真に示した。Photo. 1 (a) では 80 サイクル後にもかかわらず、リューダース帯はまだ局部的に発生し、連続する前の軟化状態で、180 サイクルおよび 297 サイクル後の (b), (c) と変形が進むとリューダース帯が連続し、その交差部分がわん曲するが、100 サイクル以上の違いにもかかわらず、両者の間に大きな差がなく、また、各変形帯の数も他に比べて少なく、変形の進行が非常に緩慢であることを示している。Photo.

Fig. 5 Changes in true stress of aluminium due to repeated strain cycling at 75°C with growth of various constant rate

(a) after 80 cycles

(b) after 180 cycles

(c) after 297 cycles

Photo. 1 Microstructure of aluminium subjected to repeated strain cycles at 75°C without growth of constant rate ($\times 202 \times 14/19.8$)

2 (a) は 80 サイクル, 1.6 % の成長後の写真で互いに 45° 方向のリュースダース帯が応力集中部に発生し, その交差部分がすでに少し乱れ, 応力は減少から増加に移り始める初期の状態を示す. (b) の 223 サイクル, 4.5 % の成長になるとリュースダース帯の幅が太くなり, 完全に発達し屈曲した微小なすべり帯や, しわが微細化部に発生した硬化状態を示す. Photo. 3 (a) は 10 サイクル, 0.74 % の成長後で, 局部的に発生したリュースダース帯がまだ連続せず応力は減少状態にある. (b) の 40 サイクル, 約 3 % の成長になると互いに交差したリュースダース帯によって結晶の微細化が起こり屈曲し, すでに応力は増加している. (c) の 80 サイクル, 約 6 % 成長後ではさらにその変形が著しくなり, 各変形帯の数が増し, 完全に発達し, 微細化の程度も著しい. 以上, 組織的に見た応力の低下は局部的な弱いリュースダース帯, すべり帯, しわ変形等の発生に基づく内部応力の除去に原因し, さらに変形が進行し, リュースダース帯が応力集中部全体にわたって互いに連続するまで軟化の傾向は続く, そしてさらに変形が進むと結晶が互いに 45° 方向のリュースダース帯の交差によって微細化され, その内部に屈曲したすべり帯, しわ変形等が発生すると硬化現象が起こる. このような組織変化の一連の進行過程は成長率の大小によらず, 同様な経過をたどるが, その進行速度および各変形帯の発生数はおもに成長率の大小に影響され, 成長率の小さいほど進行速度はおそく各変形帯の数も少ない.

特に成長率零の場合には繰返数が多いにもかかわらず, 割れ発生の間近かまで変形の進行は緩慢で, 割れ発生部の近傍のみの変形が著しい. また, いずれの付加成長の場合にも割れは試料の軸方向に直角なしわ変形の発達部に起こっている. 一例として成長率の 297 サイクル後の割れ発生箇所を Photo. 4 に示した. Fig. 5 の応力曲線終端部の矢印は局部変形の進行による割れ, または座屈現象の発生したサイクル位置を示し, そのときは応力の急な減少, または非常に不規則な応力変化を示す. その際の繰返数は成長率の大きいほど少ない.

Fig. 6 は Fig. 5 の 1 サイクル時の最高応力に対する各サイクル後の応力の変化率と成長量との関係に書き改めたもので, 比較のため一軸方向の単純な引張り

Photo. 4 Crack of aluminium subjected to 297 strain cycles without growth. Crack direction is vertical to specimen axis $\times 63 \times 4.9/6.3$

(a) after 80 cycles

(b) after 223 cycles

Photo. 2 Microstructure of aluminium subjected to repeated strain cycles at 75°C with growth of 0.020% per cycle ($\times 202 \times 9.8/13$)

(a) after 10 cycles

(b) after 40 cycles

(c) after 80 cycles

Photo. 3 Microstructure of aluminium subjected to repeated strain cycles at 75°C with growth of 0.074% per cycle ($\times 202 \times 14/19.8$)

による結果を同時に示した。この場合は0.59%伸びの応力を基準にし、それに対する変化率を取ってある。その引張速度は0.35 mm/毎分で、これはひずみ繰返試験の最高速度に相当する。図から同一成長量ではサイクルあたりの付加成長率の小さいほど、すなわち、繰返数の多いほど応力の減少が著しい。このことから繰返しは軟化を、付加成長は硬化を助長する傾向を示し、特に3%以上の成長量になると、付加成長は局部変形を著しく促進する。一方、単純引張りでは初めから硬化し、軟化の程度は少ない。これは変形が一方方向に進むためと考えられ、その組織変化について観察した。Photo. 5 にその組織を示す。1%伸び以下では変化は認められず、(a)の2%付近から明らかに、繰返しの場合に比べ、密に屈曲したすべり、しわ変形帯が局部的に発生しているのが認められる。(b)、

Fig. 6 Percentage changes in true stress of aluminium due to accumulated growth amount

(c)の3.3, 6.2%伸びと変形が進むと、さらに密に応力部全体に各変形帯が発生して結晶の微細化を促進する。しかし繰返しの場合に比べ、各変形帯の直線性が劣り、また発生したリューダース帯も一方向が優先し幅も狭い。これは Photo. 3 の成長量約6%の場合と比較するとわかる。以上のように一般的な傾向として繰返しでは、各変形帯が直線性をもち、また、付加成長率の大きいほどその発生密度も高くなる傾向を示す。しかし単純引張りでは各変形帯が非直線性を示し、その密度も繰返しの場合よりさらに高い。このことから単純引張りでは発生した転位が次々と各種の障害物に堆積した場合、その応力によって起こし、また起こされた易動箇所か、新たな変形箇所と次々と変形が進行して、順次高い応力状態で変形が進む。また成長を付加したひずみ繰返しでは付加成長が加わり転位密度を増加する。しかし繰返しによる反転応力はかえってこの増加堆積転位の障害物に対する誘導力を増して転位のなだれ現象を助長しながら変形が進行するためであろうと考えられる。

Fig. 7 は試料に割れ、または屈曲が発生したときの繰返数の対数と1サイクルあたりの付加成長率との関係を図示したもので、両者の間にほぼ直線関係が成立することを示し、付加成長率が寿命に悪影響をもたらす傾向がわかる。

4. む す び

Fig. 7 Relation between number of strain cycles to failure and growth rate (% per cycle)

(a) 2 percent elongation

(b) 3.3 percent elongation

(c) 6.2 percent elongation

Photo. 5 Microstructure of aluminium subjected to various amount of elongation by simple tension at 75°C ($\times 202 \times 14/20$)

天然ウラン棒の熱サイクルに基づく変形に拘束されたアルミニウムの関連変形実験を行ない, その結果から両金属間の関係を人為的に成長を付加したひずみ繰返試験としてアルミニウムについて行ない次の結果を得た.

(1) 関連変形実験および成長を付加したひずみ繰返試験からしん材ウランの熱成長は被覆材アルミニウムの局部変形を助長する. また, 本関連変形実験の条件下ではアルミニウムの 75°C における弾性限は最初はしん材温度が 365°C で起こるが, 150 サイクル後にはウランの 315°C に対応して起こり, 約 50°C 低下した.

(2) 成長を付加したひずみ繰返試験に示された応力変化の増減, およびその時期は成長率の大小に依存する. その際の組織変化の進行過程は成長率の大小にかかわらず同じ傾向をたどるが, 付加した成長率の小さいものの組織変化の進行はおそい. これは各種の変形帯の発生密度とその形状に影響されることを示した.

(153頁より)

50% Cu-50% Au 合金の高温ねじりクリープ(High Temperature Creep of a Copper-Gold Brazing Alloy in Shear) by M.L. Rudée, L.E. Fischen, O.T. Pierce and R.A. Huggins, Welding Journal, Vol. 41, No. 10, p. 451/454 (1962.)

本論文は 50% Cu-50% Au のろう付き合金の 900°F~1135°F の高温におけるねじりクリープ性質を実験的に考察した結果を述べたものである. すなわち, クリープ速度の温度および応力依存性は $\dot{\epsilon} = k\sigma^n \exp[-\Delta HC/RT]$ で表わすことができ, また, クリープ速度はろう付き金属の厚みに大きく影響され, その薄いもののクリープ速度は大きくなることを指摘している. また, 高温で焼なましを施すと厚い joint のものはクリープ速度が増加するが, 薄いものでは大きな影響がないことを指摘している. すなわち, 上式における応力依存性のべき数が 5.5, 同じく上式の活性化エネルギー ΔHC の値が 900~1135°F の温度範囲で 76000 cal/mal となることを指摘し, また, ろう付けしたままの試片の定常クリープ速度は joint の厚みに大きく影響を受け, 厚みが薄くなるほど, 特に 0.001 in 以下においてはクリープ速度が著しく大きくなることを指摘している. さらに, 0.01 in の比較的厚い joint の試片について 1445°F で焼なましを施したものでは 1000°F のクリープ試験において焼なまし時間の長くなるほどクリープ速度が大きくなり(強度が減少し), 一方薄いものでは大きな影響のないことを指摘している.

(大南正瑛)

(3) 付加成長とひずみ繰返しは相い反する強度現象を与えるが, このことはひずみ繰返しと単純引張りとの組織変化の違いから説明を試みた.

(4) 1 サイクルあたりの成長率と寿命繰返数の対数との間に直線関係が得られ, 成長率の増加は寿命を低下する.

以上, しん材として使用するウランは熱成長の少ない材質を使用し, また使用温度を制限することは当然であるが, 被覆材アルミニウムとの関連変形実験および成長を付加したアルミニウムのひずみ繰返試験から再確認された.

参考文献

- 1) たとえば, Holden., Physical Metallurgy of Uranium (1958)
- 2) J. Bernard, et al., The International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy., Report, E-14, P/1164 (France)
- 3) L.F. Coffine, and Coworker., Trans. of the Metallurgical Soc. of AIME, 215, 795 (1959)
- 4) 川崎, ほか, 材料試験, 11, 102, 64 (1962)

高窒素 308 L 溶着金属のクリープ破断性質 (Stress Rupture Properties of High-Nitrogen 308 L Weld Metals) by Thomas J. Moore, Welding Journal, Vol. 41, No. 4, p. 175/181 (1962)

二つの新しい型の Lime-coated electrode (0.1~0.2% N 合の 308 L 型のフェライト系のものと 0.1~0.2% N および 6% Mn 合の 308 L 型のオーステナイト系のもの) が 347 型不銹鋼の溶接に対して評価されている. すなわち, 1200°F の温度においてこれらの溶着金属はそれと同じクリープ破断強度をもつ 347 型不銹鋼と充分溶接可能であり, また 1000°F に対して 347 型不銹鋼の母材と等しいクリープ破断強度を必要とするときは, 特に, 308 L のフェライト系のものが 347 型の electrode の代りに用いることができることを指摘している. その他, 新しい溶着金属に対して常温および -150°F~320°F の低温における Charpy 衝撃試験の結果も付け加えている. また, 著者は Brady の研究結果を引用して, 上述の electrode が標準の 347 型の electrode に比べて次の利点を有することを指摘している. すなわち, 高温において長時間負荷せるときの組織安定性が増加すること, 1200°F においてすぐれたクリープ破断強度を有すること, および -320°F において高い溶接材切欠靱性を有することを指摘している.

(大南正瑛)

(177頁へ)