

JAERI-M

6869

ジルカロイの酸化に及ぼす変形の影響

1977年1月

古田 照夫・川崎 了・橋本 政男・大友 隆

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

ジルカロイの酸化に及ぼす変形の影響

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

古田照夫・川崎 了・橋本政男・大友 隆

(1976年12月16日受理)

冷却材喪失事故時の燃料棒の変形が酸化に及ぼす影響を調べるため、ジルカロイ被覆の模擬燃料棒破裂試験と高温引張試験を水蒸気中でおこなった。とくに高温引張試験は変形を与える試料と与えない試料の両者を同時におこなった。酸化評価は金属組織的方法により求めた。

変形は厚い酸化膜を生成させ、酸化を加速する傾向を与える。酸化は変形温度と変形量に依存し、700～900℃の変形温度ではむしろ低い温度の場合に強い影響をうける。酸化膜は monoclinic 型および tetragonal 型 ZrO_2 であり、変形は両者の生成割合を変化させる。また、侵入酸素も大きな変形が与えられた方がより深くまで侵入する。

Influence of deformation on the subsequent steam oxidation of
zircaloy cladding

Teruo FURUTA, Satoru KAWASAKI, Masao HASHIMOTO and Takashi OTOMO

Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

(Received December 16, 1976)

Concerning the influence of deformation on the oxidation of zircaloy cladding under a loss-of-coolant accident condition, the subsequent oxidation after deformation has been studied by sham fuel-rod burst and high-temperature tensile tests in a steam flow. In high-temperature tensile test, tensile deformed specimens in the temperature range of 700° - 900° C and the undeformed ones were exposed, at the same time, to steam at 1000° C. Oxidation kinetics were examined using metallographic methods. Deformation before the subsequent oxidation results in increase of the growing oxide. Apparent thickness of the growing oxide depends on temperature and degree of the deformation. The growing oxide is composed of monoclinic and tetragonal zirconia, the fraction of which is influenced by extent of the deformation. Severe oxygen penetration as well as increase of the growing oxide, is found in the rupture lips of deformed specimens.

目 次 な し

1. はじめに

軽水炉の仮想事故である冷却材喪失事故評価では、燃料被覆管の酸化量が著しい酸化が生ずる直前の被覆管肉厚の15%以下でなければならないとされる。したがって、ジルカロイ被覆管と水蒸気との酸化反応速度が事故解析上きわめて重要な値となる。このため、我国および諸外国でジルカロイ被覆管と水蒸気との反応速度に関する研究が近年精力的におこなわれ、900~1300℃の温度範囲にわたる反応速度についての多くの知見が得られてきた。¹⁻⁵⁾ しながら、冷却材喪失事故時には燃料被覆管が蓄積熱や核分裂生成物の崩壊熱のため高温になり、被覆管内の内圧上昇が生じ、かつ高温になるため被覆管の強度が減少して被覆管に変形と破裂が生じる。多くの被覆管内圧破裂試験の結果から、被覆管の変形と破裂は内圧によって700~1100℃の温度範囲で生じている。⁶⁻¹²⁾ したがって、事故時には被覆管の変形と破裂が生じると同時に著しい酸化が起る場合や、とくにクリープコラップスを防ぐ目的で予め加圧されるため内圧が大きいPWR型炉のときには著しい酸化が起る以前に被覆管の変形や破裂が生じてしまう場合などが予想される。Bradhaus と Heuer¹³⁾ は、変形中に被覆管が高温酸化される場合には、変形を受けずに高温酸化される場合に比べ酸化速度が20%程度まで加速されることを報告している。そこで、被覆管に変形と破裂が生じた後に著しい酸化が起る場合の酸化反応がどうなるかも興味のある問題である。つまり、現在酸化評価に適用されている等温酸化反応速度をそのまま用いるのが妥当であるかどうかを問題にしてみる必要がある。

そこで、著者らは、予め加圧した模擬燃料棒を用いて水蒸気雰囲気中で被覆管を変形および破裂させたのち、そのまま著しい酸化をおこなわせ酸化反応について調べるとともに、水蒸気中高温引張試験後模擬燃料棒と同様に著しい酸化をおこなわせて、酸化におよぼす変形の影響について検討を加えた。

2. 方 法

模擬燃料棒の詳細を第1図に示す。用いた被覆管はZry-4であり、その主な化学成分は同図中に示されている。Zry-4の被覆管のなかにUO₂ペレットを模擬したAl₂O₃のペレットを入れ、ペレットと被覆管のギャップは実燃料のギャップ0.15mmと同じである。また、模擬燃料の空間体積は1.4 cm³であり、この値は実燃料棒と模擬燃料棒の長さの比で決めた。室温におきアルゴンガス(純度99.999%)で10, 20, 30, 40, 50 kg/cm²の内圧を各模擬燃料棒に与え、第2図に模式的に示される水蒸気反応槽で模擬燃料棒の変形・破裂をおこなわせ、1000℃で約6~7分間の酸化をおこなった。

第2図に示される水蒸気反応槽の諸条件は次のとおりである。水蒸気圧力1気圧水蒸気流量は0.4 g/cm²・min、なる条件の反応槽中に模擬燃料棒を入れ、電気抵抗炉で加熱した。模擬燃料棒はほぼ3.7分で1000℃に達する。予め加えられた内圧によって、模擬燃料棒は約1~2分に変形・破裂を生じた。1000℃での酸化終了後、模擬燃料棒は直ちに反応槽より大気中に

引き出された。^{*}酸化反応を検討するため、模擬燃料棒は破裂開口部断面上におき酸化被膜の測定をおこなったが、その測定位置は破裂先端の一端を測定位置1とし、断面円周上で破裂開口部反対側を5、そして破裂部先端のもう一端を9とする断面円周上の9点とした。軸方向の被膜厚さ測定は、破裂部先端、変形が顕著に認められる点および破裂先端より約30mmの3点ならびに軸断面上で前3点の各々に対応する反対位置の合計6点でおこなった。被膜厚さは100または200倍の光学顕微鏡を用いて測定した。

酸化反応を測定する第2の方法として、水蒸気中高温引張試験後に顕著な酸化をおこなった。水蒸気中高温引張はインストロン1113型万能試験機を用いておこない、第3図にその模式図を示す。用いた試料はZry-4の板状引張試験片(第3図参照)および変形を与えないために引張試験片を途中から切断した試験片の2枚を同時に引張治具に装着した。温度測定は白金-白金・ロジウム熱電対を両試料の側面に取付けておこなった。水蒸気圧力は 1 kg/cm^2 、水蒸気流量は $1.3 \text{ g/cm}^2 \cdot \text{min}$ である。引張試験開始温度は $700 \sim 900 \text{ }^\circ\text{C}$ であり、そのときの引張速度は 5 cm/min (1.7 mm/mm/min)である。このため、引張試験片が破断するまでにおよそ10秒ほどを要し、試料の昇温速度が約 $3 \text{ }^\circ\text{C/sec}$ のため、引張変形中におよそ試料は $30 \text{ }^\circ\text{C}$ ほど温度が上昇する。引張破断後両試料は $1000 \text{ }^\circ\text{C}$ で5分間保持をおこない、酸化膜測定を破断試料では破断部先端より5, 10, 15 mm位置におきおこない、非破断試料は破断試料の位置に対応する各位置でおこなった。被膜厚さの測定は模擬燃料棒と同様である。

形成された酸化被膜の同定をX線回折を利用しておこない、回折条件は電圧40 kV、電流30 mAのCu-K α 線を使用し、スリット $1/2^\circ$ 、ステップ速度 $0.02^\circ/\text{min}$ である。

さらに、酸化によって侵入した酸素濃度の変化を調べるため、加速電圧15 kV、試料電流 $0.2 \mu\text{A}$ なる条件でRAP結晶によりEMX-SMで酸素分析をおこなった。このときのビーム径は $5 \mu\text{m}$ 、ガスフロー検出器により、試料表面全体にわたる酸素濃度分布を酸化被膜測定位置についておこなった。

3. 結 果

模擬燃料棒の破裂部断面上での酸化膜が、模擬燃料棒の変形温度とどのような関係にあるかにつき検討をおこなった。第4図における酸化被膜厚の比は、破裂断面上で破裂部先端近くの点(図中の2)と破裂開口部反対側(図中の点5)で表わされている。変形温度は燃料棒の著しい変形が起ってから破裂までに要する時間が短いから、¹⁴⁾破裂温度を変形温度とした。酸化膜厚の比と変形温度との関係は値にバラツキが認められるが、およそ変形温度が低いほど酸化膜厚の比が大きくなる傾向がみられる。すなわち、酸化膜厚が厚くなる。

そこで、水蒸気中高温引張試験後酸化をおこなった場合の酸化膜厚を調べると、第5図のよ

* 酸化反応の測定には、酸化による重量増加を求める方法と酸化によって生ずる酸化被膜厚さを求める方法とがあるが、変形後に重量増加を測定することが困難であるため、酸化膜厚を測定する方法で酸化評価をおこなった。

うな結果が得られた。第5図は変形の有無による酸化膜厚比に対する試験片破断部先端からの距離の函数として示されている。図より、変形温度を一定とすると、変形の有無による酸化膜厚比は試料破断部先端から離れるにしたがって小さくなる。つまり、変形が大きいほど変形によって酸化が加速されている。一方、変形温度が低くなるとともに変形の有無による酸化膜厚比は大きくなり、変形温度が低いほど、変形の酸化に対する影響が強く認められる。

第6図は水蒸気中高温引張試験後酸化した場合の試料を観察した結果である。変形を与えた試料で観察される酸化膜は、変形が大きい部分で凹凸を生じ、しかも変形の少ない部分のそれよりも厚い。金属組織的には変形の大きい部分には少ない部分に比べ侵入 α 相が多く認められ、素地中への酸素侵入も多かったものと考えられる。一方、変形を与えない試料では、試料全面にわたり酸化膜の厚さはあまり変化がない。

第5図で酸化膜厚が変形量に依存しているから、模擬燃料棒の破裂横断面上各点における酸化膜厚を第7図に整理した。模擬燃料棒の温度履歴は図中の下に示されるように破裂後900℃から1000℃まで1.7分程度を要して昇温し約6.3分程1000℃に保持される。この試験後の破裂部横断面各点の外周表面に形成される酸化膜厚をプロットすると、破裂部先端の位置1より順次破裂部反対側位置5に進むにつれ酸化膜厚が減少している。ここで、温度履歴を参考にして、模擬燃料棒に生ずる酸化を計算し形成される酸化膜厚を求めてみた。著者ら¹⁾がジルカロイ-水蒸気反応から測定によって求めた反応速度定数の値 $K_p = 6.60 \times 10^{-1} \exp\left(-\frac{41600}{RT}\right)$ 、および Baker - Just¹⁵⁾ の $K_p = 410 \cdot \exp\left(-\frac{45500}{RT}\right)$ を用い、反応量がすべて酸化膜になったと仮定して計算をおこなった。このときの反応温度はすべて1000℃とし、図中の温度履歴から6.3分および8分間を反応時間に相当するとした。同図中から、もっとも酸化膜厚が厚くなる Baker - Just の K_p を利用した反応時間8分の膜厚の値よりも、破断面の各点における酸化膜厚の値は大きく、変形が与えられた場合見かけ上酸化が加速されたと考えられる。

第8図には第7図と同様に模擬燃料棒の破裂部横断面の各点の肉厚に対するその点の酸化膜厚を示した。なお、各点の肉厚は初期肉厚725 μm に対する百分率で表わされ、値が小さいほど変形が大きいことを意味している。酸化膜厚の値にはかなりのバラツキが見られるが、大きな変形が与えられた場合酸化膜厚は一般的に厚くなる。酸化評価は著るしい酸化が始まる直前の被覆管平均肉厚をもとにしておこなうが、著者ら⁶⁾が被覆管の肉厚減少を求めた結果から平均肉厚は60~80%程度であった。同図から、平均肉厚が60~80%の場合酸化膜厚は30~40 μm 程度である。一方、第7図と同様に計算から推定される酸化膜厚は20~30 μm であり、被覆管に変形が生じた結果見かけ上の酸化は加速されていると考えられる。

つぎに、被覆管軸方向の外側酸化膜について検討を加えてみた。被覆管破裂部、著るしい変形が生じはじめる部分および破裂部先端から30mm離れた部分と各々の被覆管中心軸対称の部分の6点に関して膜厚の測定をおこなった。この結果を第9図に示す。破断部先端の酸化膜は厚く、かつやや多孔質のように見えるのに対して、変形を一番受けていないと思われる破裂部から30mm離れた破裂反対側の被膜は厚さが薄くかつ緻密である。以上のような差違が見られるから、第10図に各位置における肉厚と酸化膜厚の関係を示す。肉厚の薄い破裂先端部の被膜は40~50 μm と厚く、破裂部から離れるにつれ膜厚が減少する。破裂部から30mm離れると、ほぼ初期肉厚程度となり変形を生じていない。この点では20~30 μm 程度の膜厚

になる。ここでも、第7図同様計算から求めた膜厚と比較すれば、実測の膜厚は計算値のそれよりも厚い。第11図は第10図と同じで、燃料棒の酸化時間が異なる場合である。酸化時間1分の場合も6.3分と同様に破裂部先端部の酸化膜厚は厚くなっている。計算から求められた値よりも実測による膜厚は厚いが、反応時間が短かいため計算値と実測値による差は第7図の場合よりも少ない。

第6図の酸化膜につきX線回折で同定をおこなった一部を第12図に示す。酸化膜は monoclinic 型 ZrO_2 と tetragonal 型 ZrO_2 から形成されているが、変形が与えられた場合の酸化膜には変形が与えられない場合のそれに比べ tetragonal 型 ZrO_2 がやや認めにくい。さらに第6図の組織写真から変形を与えられた場合には破断部に近いほど侵入 α 相の存在が認められる。そこで、第6図の組織写真に対応する位置における EPMA による酸素の分布測定結果を第13図に掲げる。図には各位置での表面から約 $350 \mu m$ 程度と肉厚中心部付近の $150 \mu m$ における酸素濃度が示されている。変形が与えられない場合には表面から約 $200 \mu m$ 程度までは酸素侵入が起っているのに比べて、変形が与えられた場合は $200 \mu m$ 以上まで酸素侵入が認められる。しかも、破断部近傍になるにつれ、酸素侵入深さは増加し、侵入 α 相と考えられる高酸素濃度ピークも見られる。とくに破断部先端の位置においては、肉厚中心部付近にも侵入 α 相が存在する。

以上の酸素濃度分布測定の結果から、変形が与えられた場合には変形が与えられていない場合に比べ酸素侵入がより深くまで生じ、組織観察の侵入 α 相の存在などもよい対応が認められる。

4. 討 論

4.1 酸 化

ジルカロイを水蒸気中で加熱すれば、低温でも酸化が起る。本試験の場合、変形が $700 \sim 900^\circ C$ で生じているから、変形を生ずる前までの酸化量がどの程度であるかを評価しておく必要がある。 $900^\circ C$ 程度までにおけるジルコニウムおよびその合金の酸化は、時間の $\frac{1}{2}$ ¹⁶⁻¹⁹⁾ または $\frac{1}{3}$ ²⁰⁻²²⁾ 乗に比例するといわれ、多くの報告が存在する。しかし、ここでは $600 \sim 800^\circ C$ 範囲におけるジルカロイ-2の酸化²³⁾を参考にして以下の議論を進める。福島ら²³⁾の結果を参考にすれば、 $700^\circ C$ または $800^\circ C$ で1分間保持されたとしても酸化膜厚は $1 \mu m$ 程度でしかない。したがって、第7, 8, および10, 11図のような酸化膜厚から考えれば数%の誤差範囲程度でしかないため、前記図面中の酸化膜厚は主として $900^\circ C$ 以上の温度で形成されたと判断される。

変形温度によって引続く酸化の状態は異なっているが、第10, 11図で整理された燃料棒の破裂温度は $780 \sim 870^\circ C$ であり、第5図の変形温度効果を考慮すると、この破裂温度範囲における酸化膜厚変化は同じ傾向を持っていると考えられる。そこで、第10, 11図を利用して、燃料棒の各肉厚に対し酸化膜厚を整理すると第14図になる。第10図の酸化膜厚は一定の肉厚に対してかなり広い値を与えるが、第14図ではその範囲の平均値を求めて示してある。一

般に $Zr-H_2O$ 反応は反応温度 1000 °C 以上で放物線則に従う^{1)~5)} したがって、同図中の各被覆管肉厚毎に酸化膜厚は放物線則が成立つと仮定して以下の整理を試みた。第 14 図から、被覆管肉厚が薄くなるにつれて酸化膜厚が増加し、その増加に対する割合はおおよそ一定になる傾向が見られる。このため、酸化膜厚 δ は、反応時間 t との間に $\delta = K_\delta \cdot t^{1/2}$ (K_δ : 常数) なる関係式で与えられるとしたときの常数 K_δ の被覆管肉厚依存性を求めた。第 15 図から、常数 K_δ は被覆管肉厚 d (%) との間に

$$K_\delta = -5 \times 10^{-2} \cdot d + 18 \quad (\mu\text{m}/\text{min}^{1/2})$$

なる関係式が成立する。したがって、被覆管が内圧によって変形したとき、その被覆管肉厚に対応する酸化膜厚が計算される。

しかしながら、前述の議論では第 5 図に示される変形温度の影響を詳細に考慮しておらず、さらに第 10, 11 図に示されるデータ、とくに第 10 図におけるデータのバラツキを無視しているため、前項で述べたようなデータを今後得ることによって、さらにこの考え方を発展し確立していく必要がある。

4.2 酸化膜

酸化反応を測定する方法として、酸化反応前後の重量測定をおこなうか、酸化によって生成された酸化被膜の厚さを測定する場合がある。後者の方法では生成された酸化被膜の同定や、反応による酸素がすべて被膜にならなければ前者の方法と一致しない。したがって、被膜厚さから評価するのは妥当でないが、本試験のように試料の局部に変形が生じた場合などの局部における酸化評価を試みたときなど重量の測定が困難なため利用せざるを得ない。

そこで、ジルカロイが水蒸気中で酸化されたときに生成される酸化被膜がどのようなものであるかを知らなければならない。第 12 図に X 線回折の結果による試料に変形が与えられた場合と変形が与えられない場合の被膜構造が示されている。被膜は monoclinic 型と tetragonal 型の ZrO_2 から形成されているが、変形が与えられた場合は変形が与えられていない場合に比べ monoclinic 型と tetragonal 型の相対比変化から tetragonal 型 ZrO_2 の存在がやや明瞭でなくなる。中山ら²⁴⁾ はジルカロイの酸化を調べた結果、breakaway 前の黒色被膜に monoclinic および tetragonal 型 ZrO_2 が存在するのに対して、breakaway 後の白色被膜中には、monoclinic 型 ZrO_2 しか存在しない事実から、酸化が進むにつれて tetragonal 型から monoclinic 型への転移が生じると報告している。第 12 図で変形が与えられた場合に tetragonal 型 ZrO_2 が減少していると思われる事実は、変形によって酸化が加速された可能性を示している。また、彼ら²⁴⁾ は、910 °C の空气中酸化で生成される被膜中に含まれる tetragonal 型 ZrO_2 は酸化開始後約 20 分程度までの時間では全体の約 30% を占めるが、酸化時間が長くなるにつれて全体に占める割合が減少すると述べている。本試験の模擬燃料棒では monoclinic 型 ZrO_2 しか認められていないが、酸化時間の違いや変形の与えられ方の違いで、高温引張変形の場合よりも酸化過程が進んでいたものと思われる。

酸化被膜が monoclinic, tetragonal 型 ZrO_2 から形成されているため、酸化測定上問題になる点は両者の生成割合と密度である。生成割合は前述したように酸化の初期過程で

tetragonal 型 ZrO_2 の占める割合が大きい。しかしながら、LOCA 条件下での温度と時間に対応する場合の両型 ZrO_2 の生成割合を詳細に検討するデータは存在しない。一方、両型の密度は測定データで、monoclinic 型は 5.73 g/cm^3 、tetragonal 型で 6.10 g/cm^3 といわれる。したがって、被膜の厚さで考えれば、同一酸化量のとき tetragonal 型 ZrO_2 の方が厚さが薄いことになる。第 7, 8, 10 と 11 図の被膜厚さを考慮すると、図中に示された重量増加から与えられる被膜厚さを比較すると酸化が加速された可能性が明瞭になる。

酸化評価では酸化が起るときの被覆管肉厚が問題になるが、著者ら⁶⁾の被覆管平均肉厚を求めた結果、平均肉厚は初期肉厚の 60~80% となり第 8 図からそのときの被膜厚さは 20~48 μm の範囲となり、重量増加から求められる値よりも厚い。つまり、前述の被膜に生成する結晶型を考慮しても酸化が進んでいたと考えた方が妥当であろう。

tetragonal 型 ZrO_2 は、前述した breakaway 以前に存在するが、酸化の環境によっても存在する場合が認められている。すなわち、酸化前に水素または水などがジルカロイに含まれた場合²⁵⁾や、応力のもとで酸化が進んだ場合²⁶⁾には tetragonal 型 ZrO_2 の存在が報告されている。したがって、燃料棒が変形中に酸化が進む場合や、燃料棒が破裂して内面酸化が起る場合^{27, 28)}に tetragonal 型 ZrO_2 が存在する。このため内面酸化量の評価をおこなうときには注意を払う必要がある。

4.3 変形の影響

LOCA 時の燃料棒の変形は、棒内の内圧、昇温速度や被覆管の材質変化などの要因によって左右され非常に複雑な問題となる。しかしながら、燃料棒が変形を始めてから、破裂するまでの時間は極めて短かく、¹⁴⁾ 第 4 図で燃料棒の破裂温度を変形温度としても本試験の酸化被膜厚さの評価には実用上問題がないものと思われる。

酸化に及ぼす変形の影響を LOCA 条件を想定しておこなった Bradhaust & Heuer¹³⁾の研究によれば、酸化中に変形が起れば、変形がない場合に比べ 700~1100°C の温度で見かけ上 2~50% の重量増加が増える。また、変形速度が遅ければ、早い場合に比べ酸化が大きくなる傾向もみられる。変形が酸化速度を加速する事実は他の報告²⁹⁾にも見られるが、本試験のように変形が著るしい酸化温度以下で起った場合に酸化速度が早くなるという報告は見当らない。第 5 図の高温引張変形による変形温度の影響として、低温で変形されたときに酸化が大きくなる。試験片の引張特性は第 16 図に示され、引張強さは温度とともに低下するが、伸びは 800°C で極大を示す。この引張性質の変化は他の報告³⁰⁾とよい対応をしている。このような引張特性から、酸化が異なる理由を説明することはむつかしいが、局部的に与えられた変形は変形温度によって違うため、各変形温度において変形量を変化させた場合の酸化を測定することが重要であろう。

5. 結 論

軽水炉の冷却材喪失事故時の燃料棒挙動を考慮して、被覆管の酸化におよぼす変形の影響に

ついて、水蒸気中の模擬燃料棒破裂試験および高温引張試験を利用して調べた。その結果、次の結論が導き出された。

1. ジルカロイ被覆管に変形と破裂が生じた後に、引続き高温酸化が起る場合、変形は酸化を加速する傾向を与える。
2. 変形が起る温度が700~900℃であれば、酸化はむしろ変形温度が低い場合に加速される傾向が強い。
3. 変形温度が一定であれば、与えられた変形が大きい場合に酸化がより大きく加速される。
4. 酸化によって形成される酸化膜は、monoclinic型 ZrO_2 および tetragonal型 ZrO_2 である。変形は酸化を大きくすることによって形成する酸化被膜に影響を与える。
5. 被覆管に与えられる変形が大きいほど、酸化による被覆管中への酸素侵入も増加する。
6. 変形温度と変形がその後に生ずる酸化を加速する傾向を与えるため、変形と酸化との間に存在する関係を定量的に把握することが今後必要である。

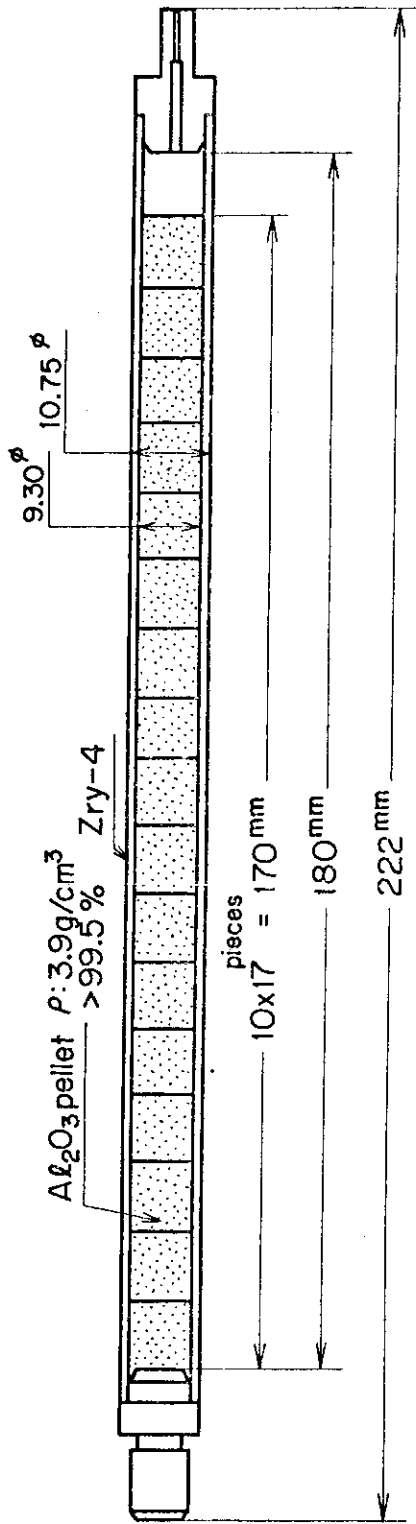
6. 謝 辞

酸化膜同定のX線回折をおこなっていただいた。中性子回折研究室 本橋 治彦氏、ならびに酸素濃度測定に御協力いただいた島津製作所 東京研究所 田中 康信氏に感謝の意をここに表します。

参 考 文 献

- 1) 古田, 川崎, 橋本, 大友: JAERI-M 6601 (1976)
- 2) 池田, 伊藤, 大橋: 日本金属学会誌 39(1975) 710
- 3) 本間ら: 日本原子力学会 1974年会要旨集 B-7
- 4) Cathcart J.V.: ORNL-NUREG-TM-41 NRC-3 (1976)
- 5) Leistikow S. et al: KFK-2195 (1975)
- 6) 古田, 川崎, 橋本, 大友: JAERI-M 6542 (1976)
- 7) 加藤ら: 日本原子力学会 1975年秋分科会要旨集 G-9
- 8) Hobson D.O., Osborne M.F. and Parker G.W.: Nucl. Technol., 11 (1971) 479
- 9) Emery A.D., Scott D.B. and Stewart J.R.: ibid, 11 (1971) 474
- 10) Hardy D.G.: CONF-730304 (1973) 254
- 11) Emmerich K.M. Junke E.F. and White J.F.: ASTM STP458 (1962) 252
- 12) Chung H.M., Garde A.M. and Kassner T.F.: Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM, Aug. (1976)

- 13) Bradhaust D.H. and Heuer P.M. : J. Nucl. Mater., 55 (1975) 311
- 14) Chung H.M., Garde A.M. and Kassner T.F. : ANL-75-72 (1976) 51
- 15) Baker L. and Just L.C. : ANL-6548 (1962)
- 16) Pemsler J.P. : J. Electrochem. Soc. 112 (1965) 477
- 17) Gulbransen R.G. and Andrew K.F. : J. Metals 9 (1957) 394
- 18) Rosa C.J. : J. Loss-Common Metals, 15 (1968) 183
- 19) Cox B. : AECL-4448 (1973)
- 20) Hussey R.J. and Smeltzer W.W. : J. Electrochem. Soc. 111 (1968) 564
- 21) Hillner E. : Electrochem. Technol. 4 (1966) 132
- 22) Charles R.G., Barnart S. and Gulbransen E.A. : AIME 212 (1958) 101
- 23) 福島 : 日本金属学会誌 30 (1966) 910
- 24) 中山, 小泉 : ibid 31 (1967) 839
- 25) 中山, 小泉 : ibid 29 (1965) 472
- 26) Pemsler J.P. : Electrochem. Tech. 4 (1966) 128
- 27) 古田, 橋本, 大友, 川崎, 本間 : JAERI-M 6339 (1975)
- 28) 本間, 橋本, 古田, 大友, 川崎 : JAERI-M 6602 (1976)
- 29) Roy C. and Burgess B. : Oxidation of Metals 2 (1970) 235
- 30) Bocek M., Petersen C. and Schweiger W. : KFK-2195 (1975)



Fuel rod (Space volume = $1.40cm^3$)

Chemical composition of Zry-4 used (wt %)

Sn	Fe	Cr	Fe+Cr+Ni	C	O	H	N	Zr
1.46	0.22	0.10	0.32	80ppm	1400ppm	20ppm	18ppm	Bal

Fig1 Fuel rod and chemical composition of Zircaloy cladding used in the experiment.

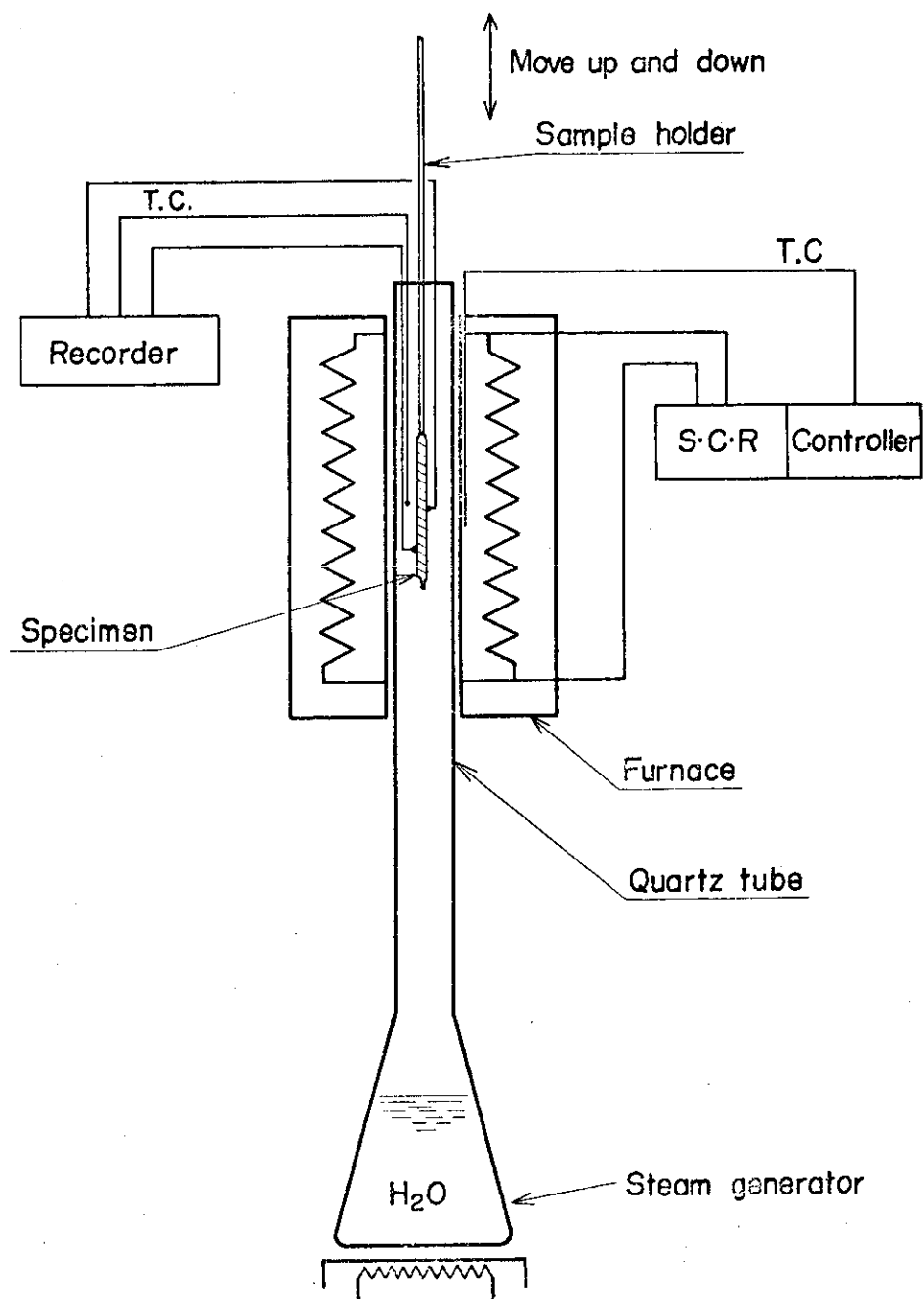


Fig.2 Apparatus for fuel rod burst test in steam

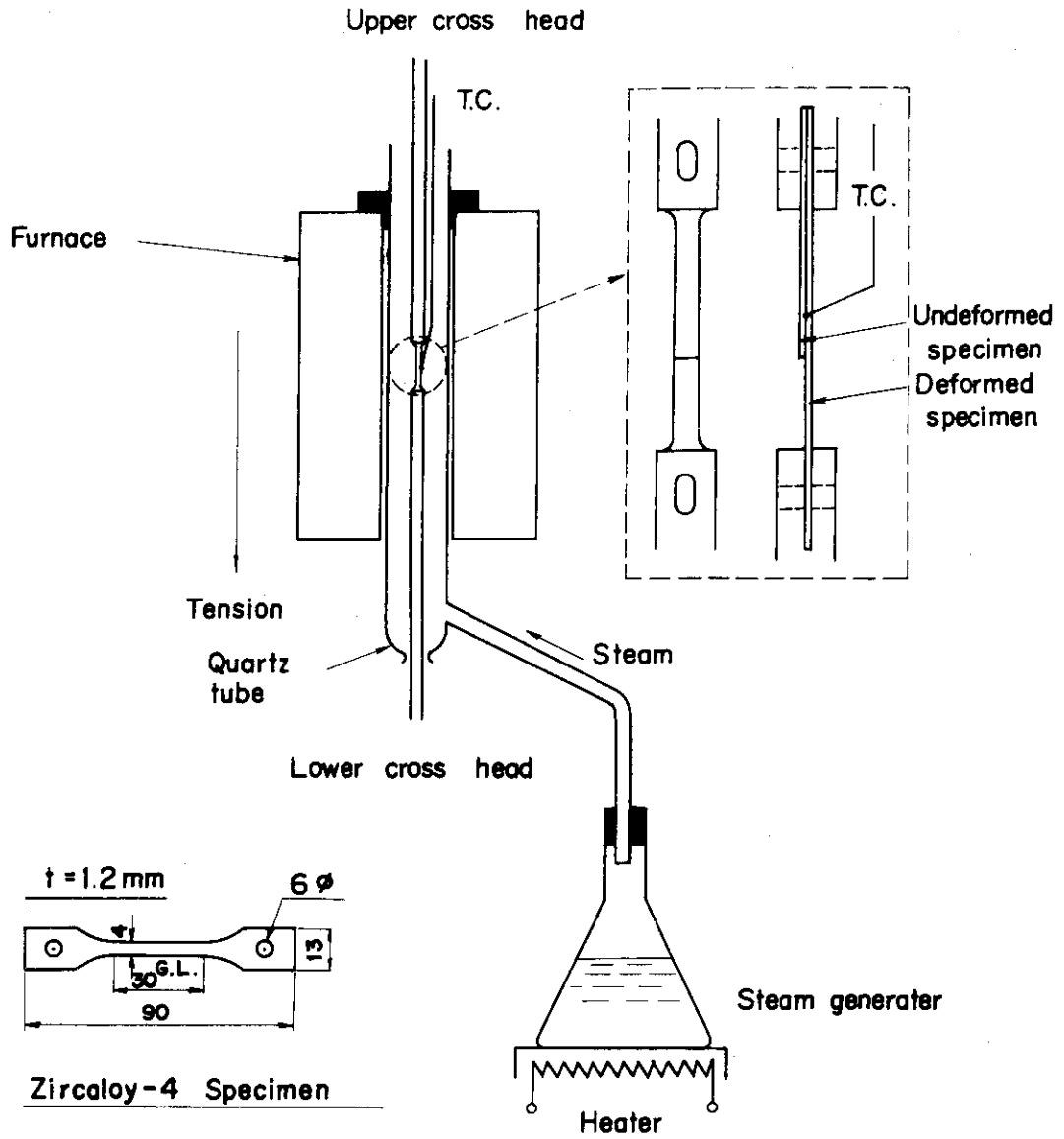


Fig.3 Tensile test in a steam atmosphere

JAERI-FRL-III-403

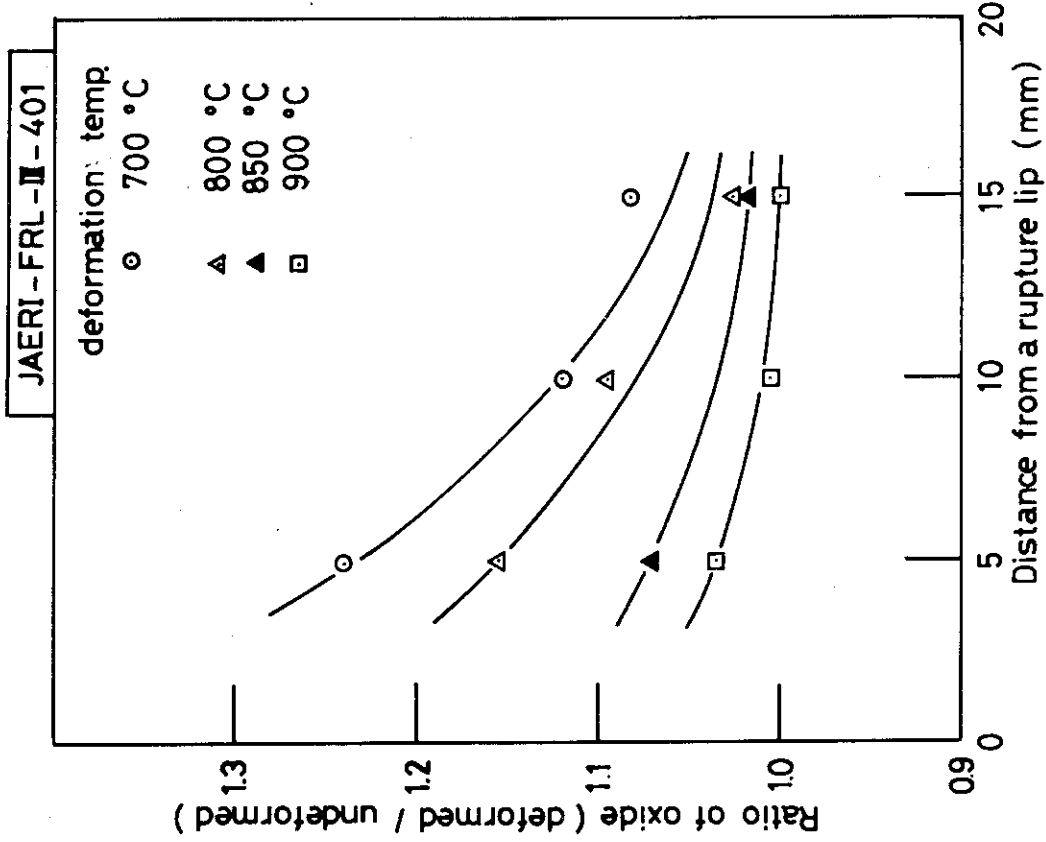


Fig.5 Variation of oxide thickness with a deformation temperature for Zircaloy-4 cladding in oxidation during a 5 min. exposure to steam at 1000 °C

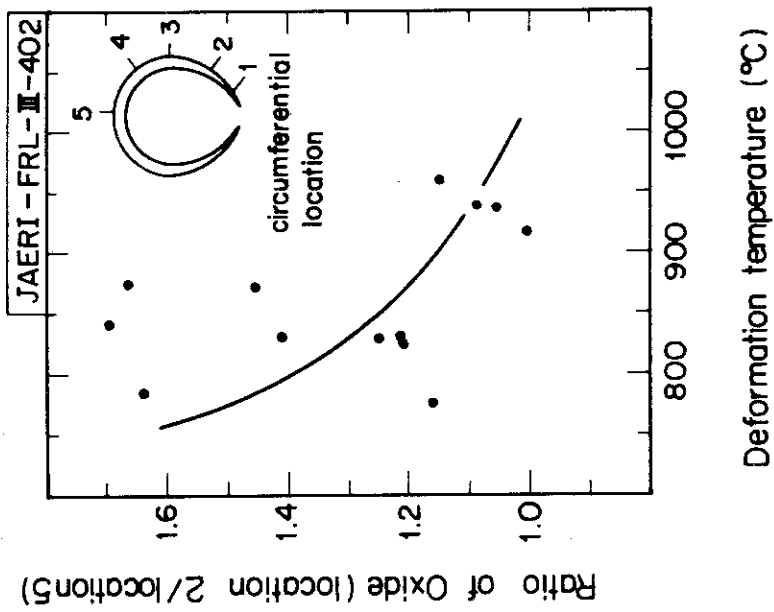


Fig.4 Variation of oxide thickness with a deformation temperature for sham fuel rod sheathed with zircaloy - 4

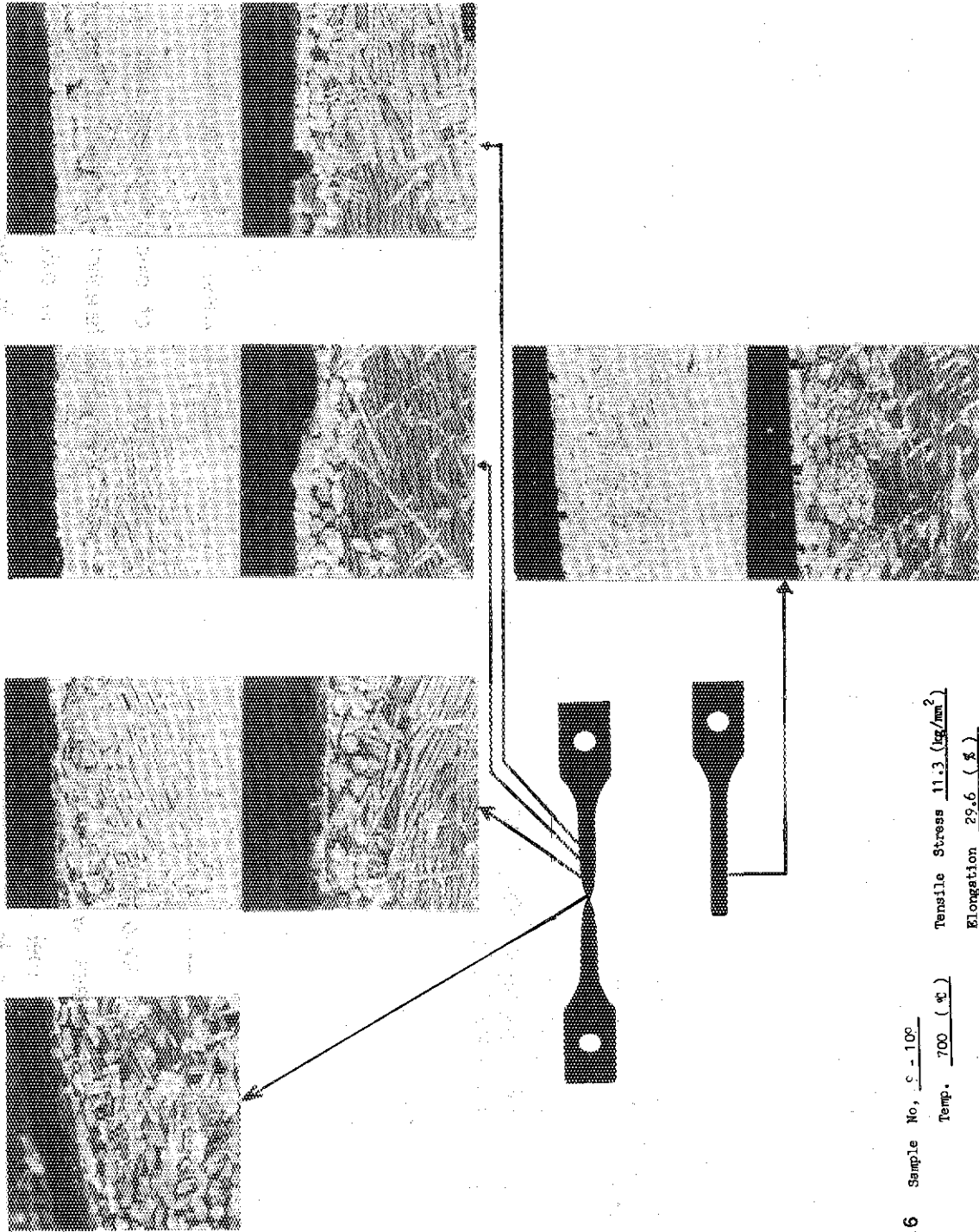


Fig.6 Sample No. C-100
Temp. 700 (°C)
Tensile Stress 11.3 (kg/mm²)
Elongation 29.6 (%)

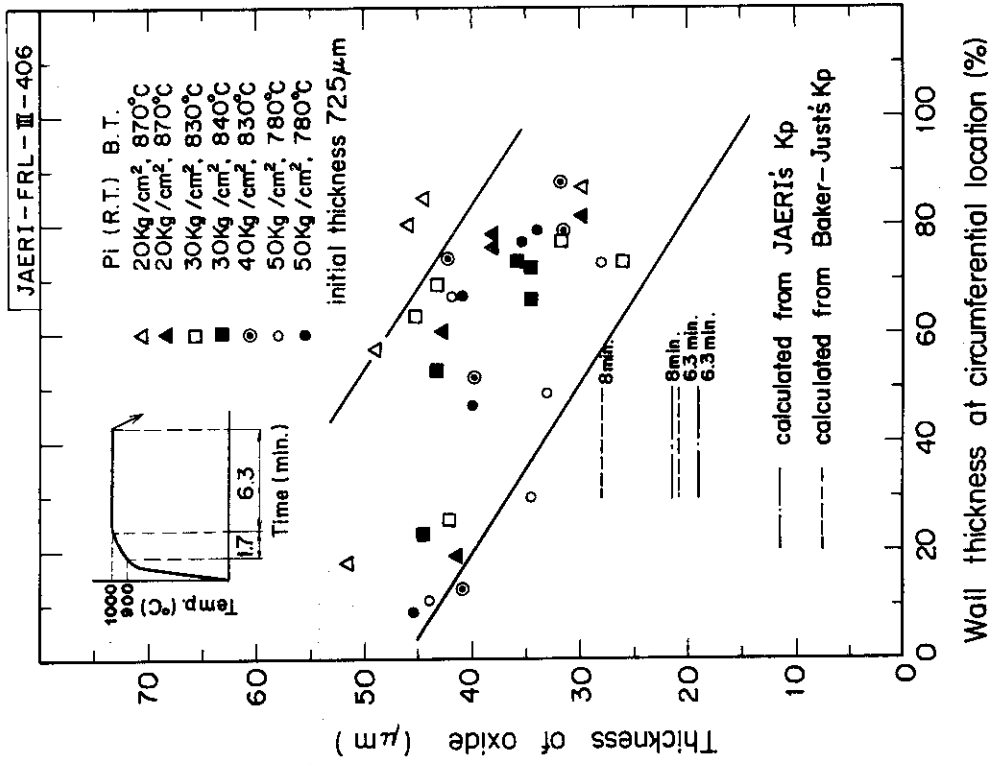


Fig.7 Variation of oxide thickness with circumferential location of ruptured sham fuel rod in oxidation during a 6.3 min. exposure to steam at 1000°C

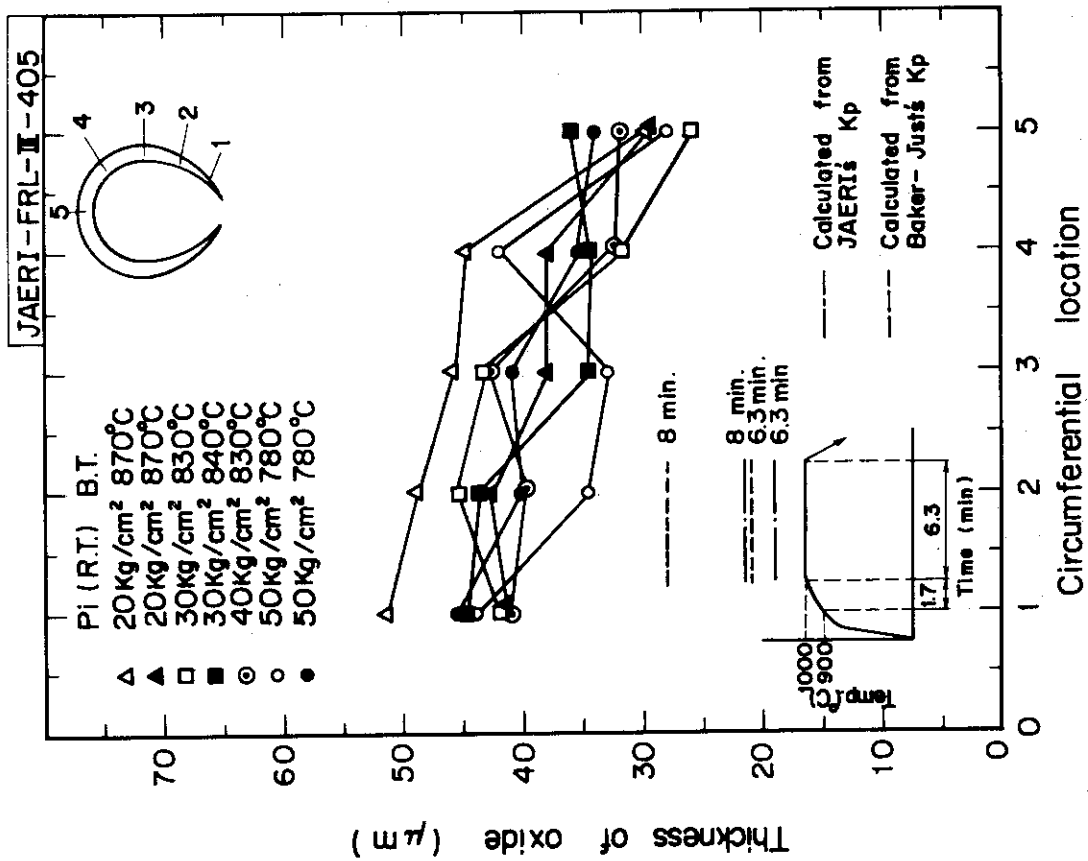


Fig.8 Variation of oxide thickness with wall thickness at circumferential location of ruptured sham fuel rod in oxidation during a 6.3 min. exposure to steam at 1000°C

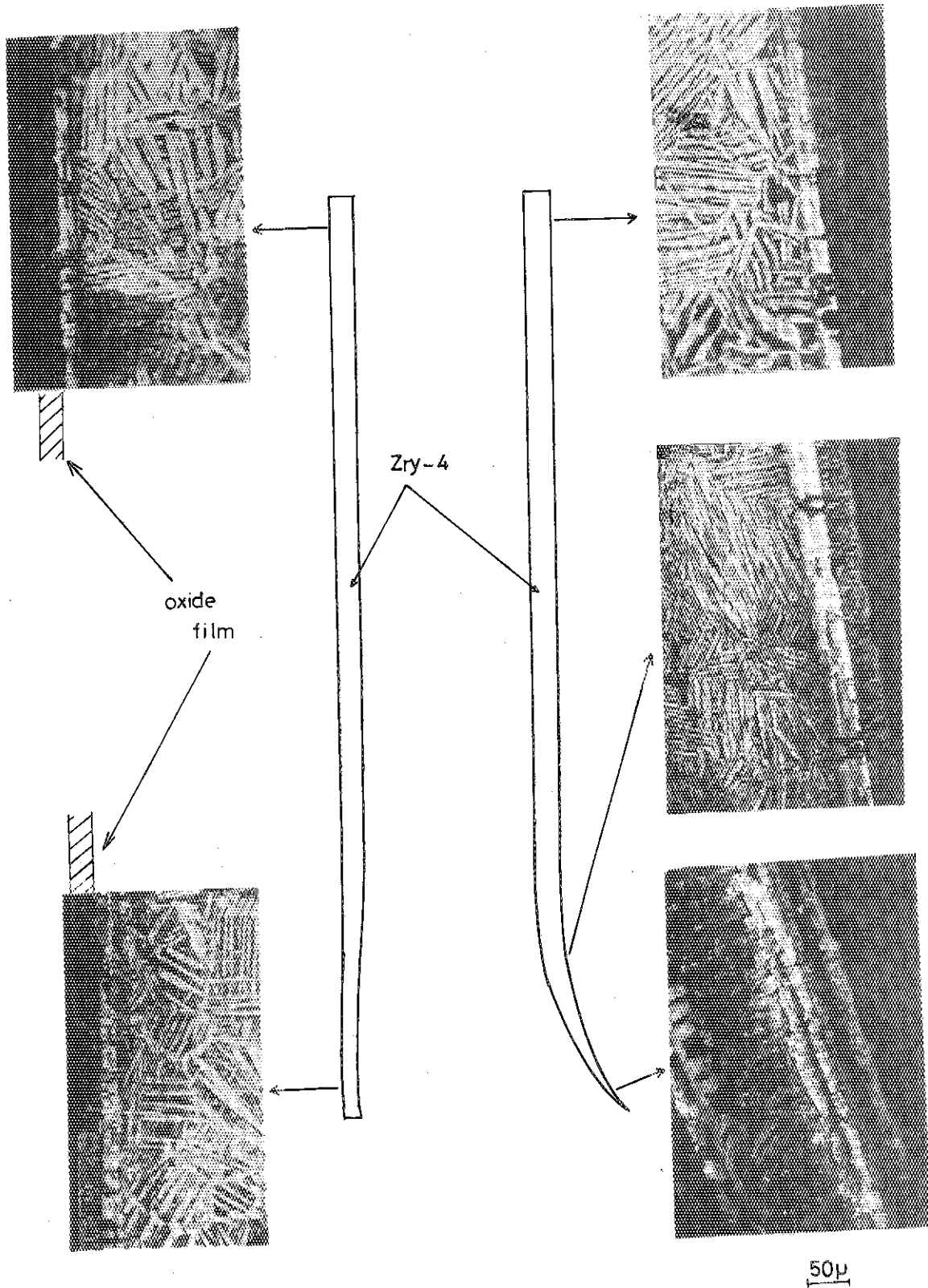


Fig.9 Longitudinal Cross Section of Tube Wall exposed to Steam for 7 min. at 1000°C

NO. 107 20 kg/cm²

JAERI-FRL-III-211

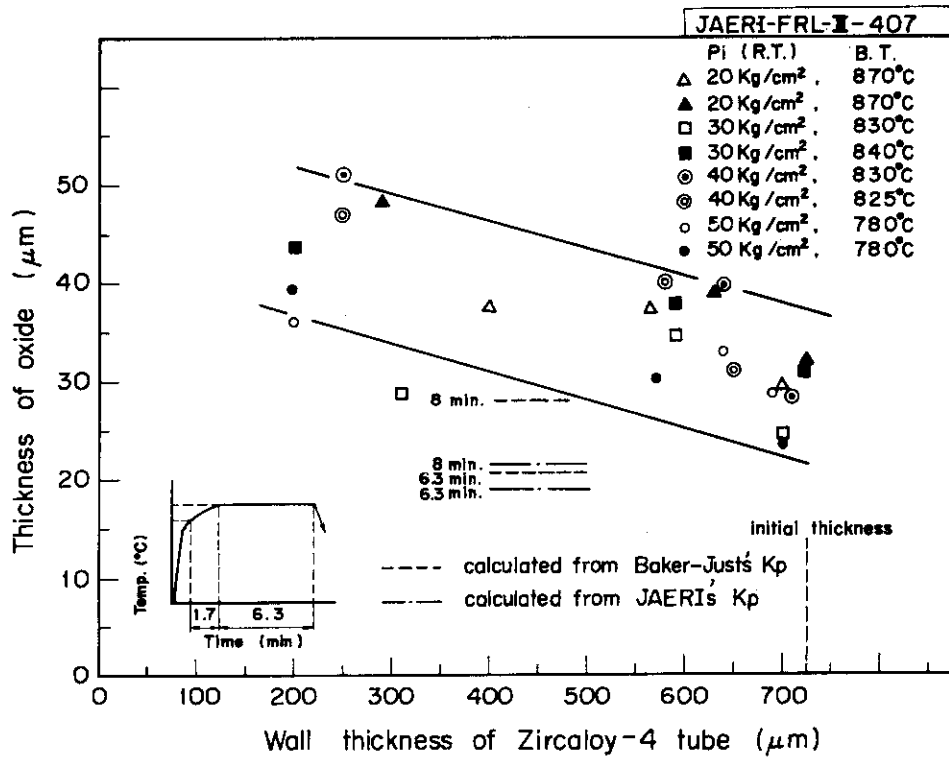


Fig.10 Variation of oxide thickness with wall thickness at axial location of ruptured sham fuel rod in oxidation during a 6.3 min. exposure to steam

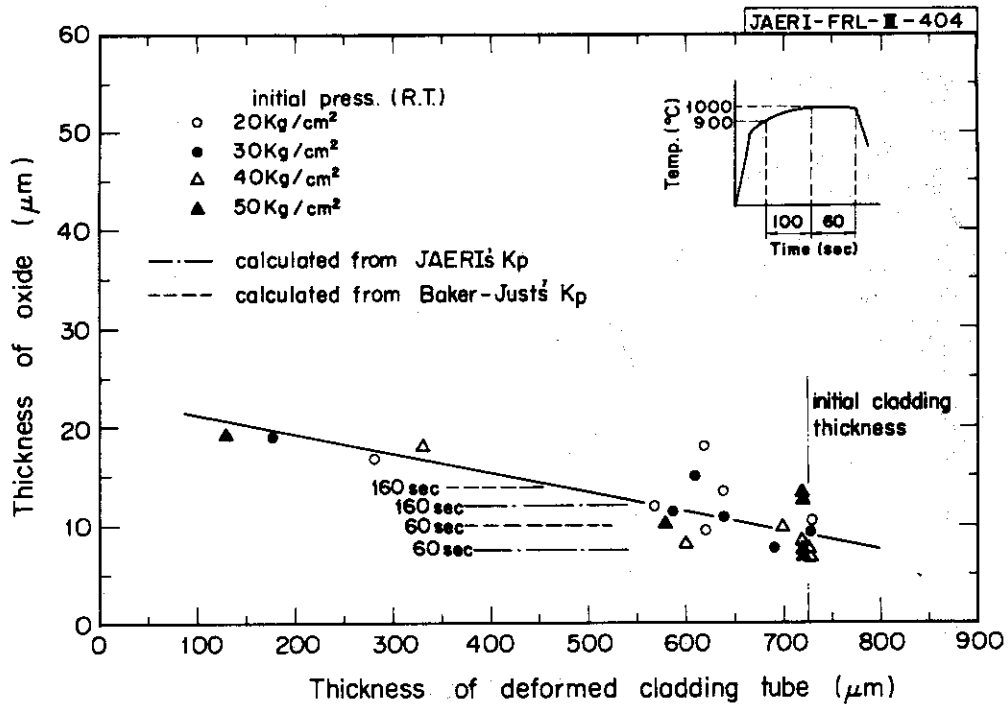


Fig.11 Variation of oxide thickness with thickness of deformed Zircaloy-4 cladding tube exposed to steam at 1000°C

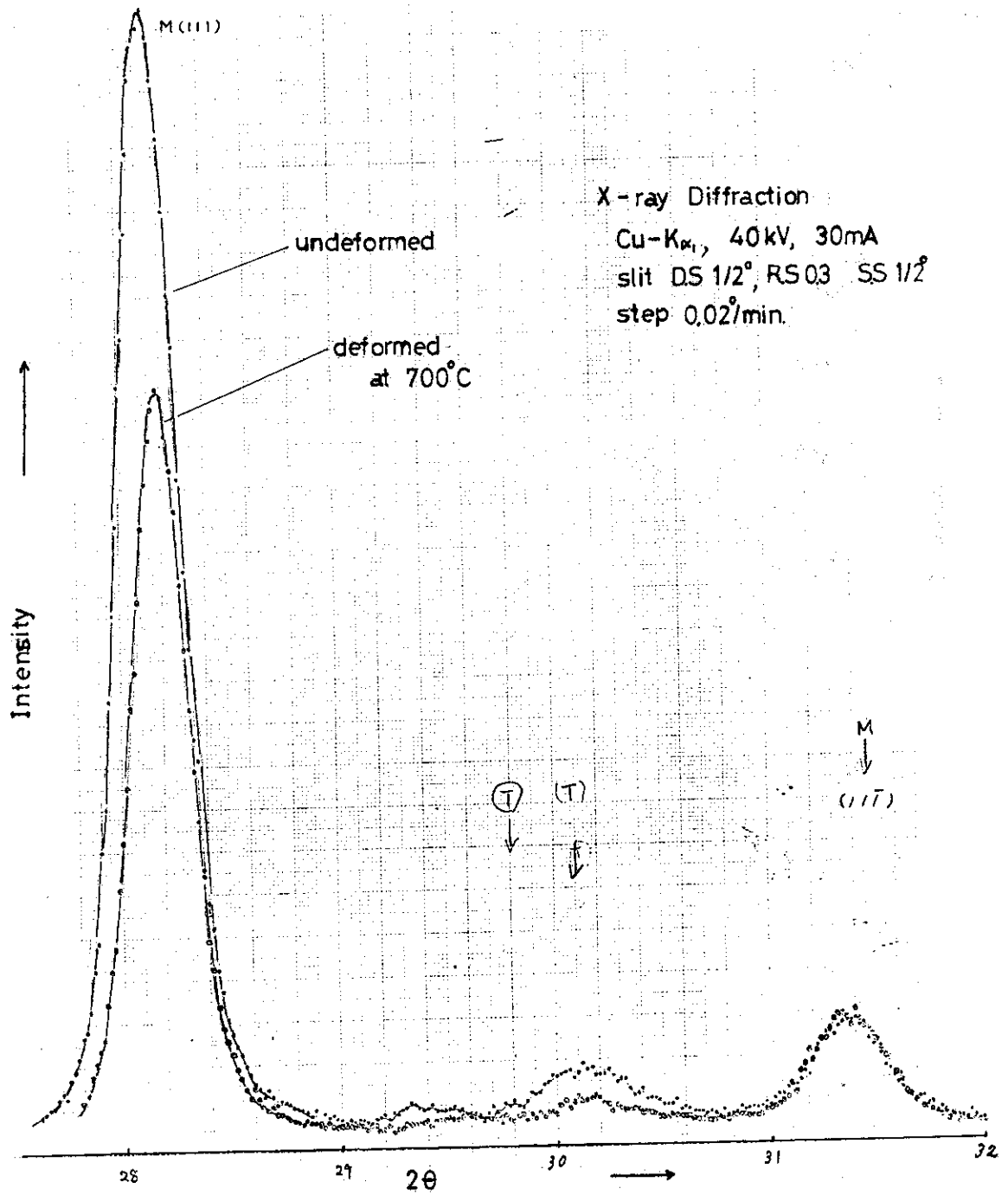


Fig.12

X-ray diffraction patterns for oxide films held for 5 min. at 1000°C

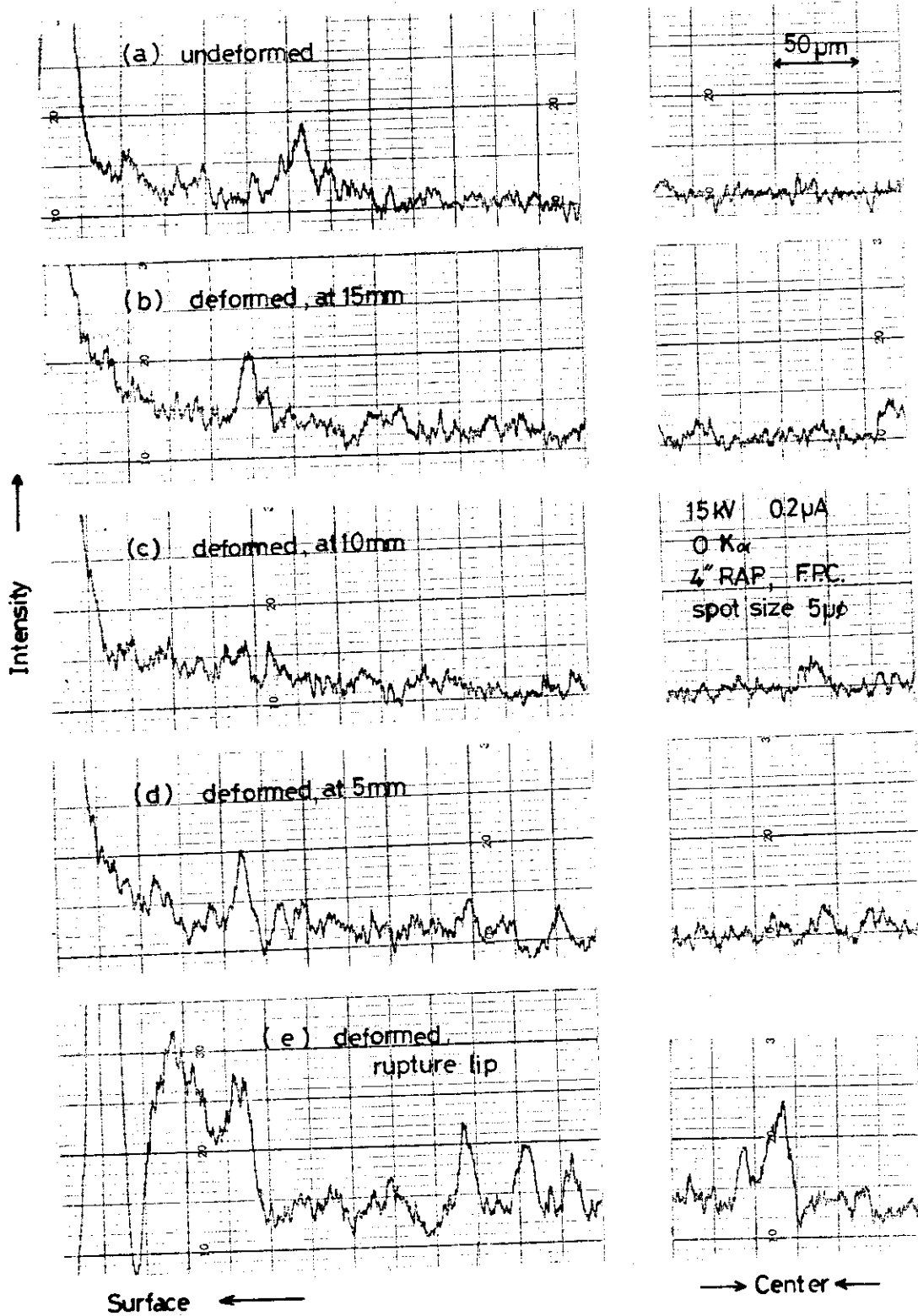


Fig13 Penetration of oxygen in Zircaloy - 4 exposed to steam for 5 min. at 1000°C

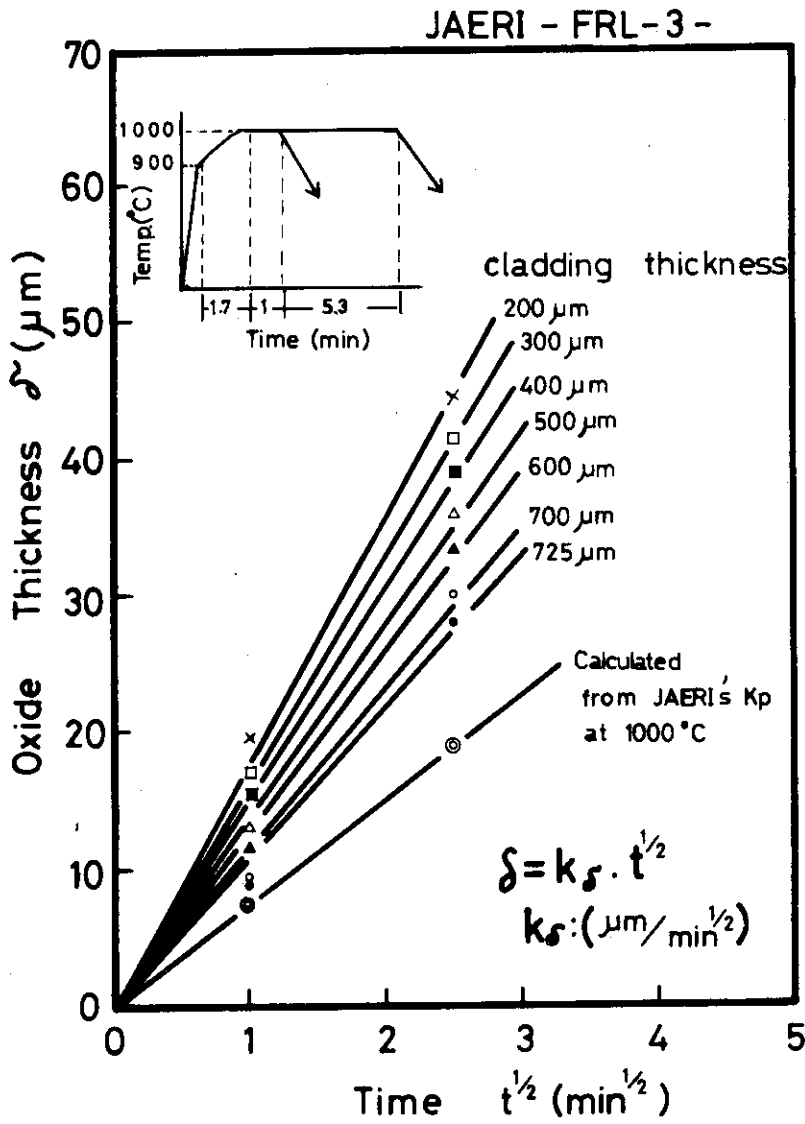


Fig.14 Oxide thickness vs. Reaction time for Zircaloy - 4 cladding.

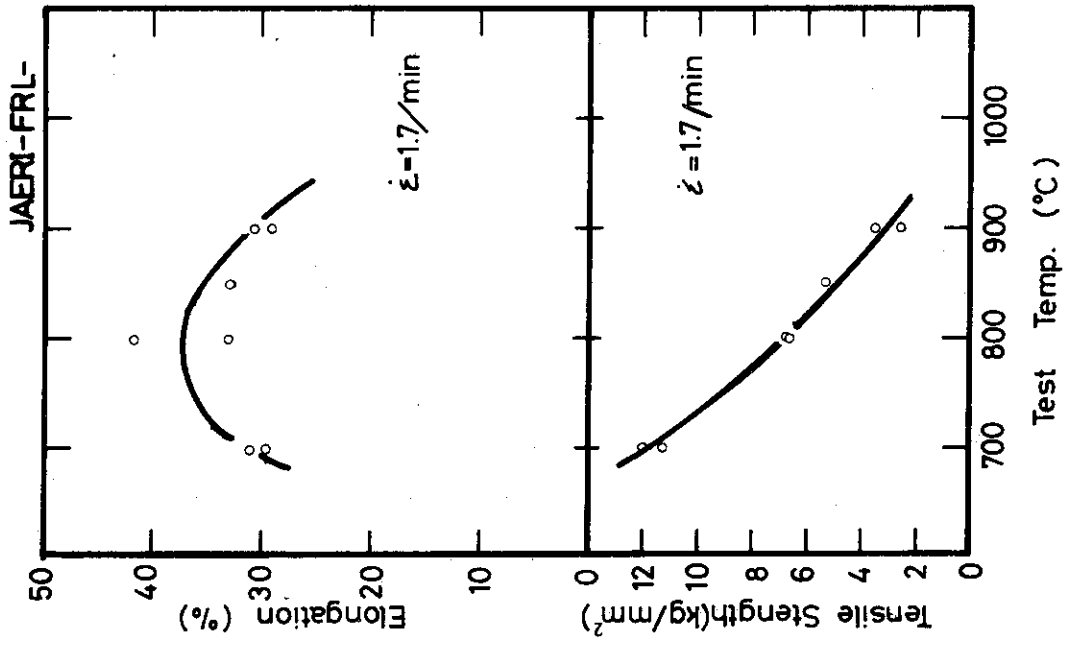


Fig.16 High temperatur mechanical properties for Zircaloy - 4 in steam.

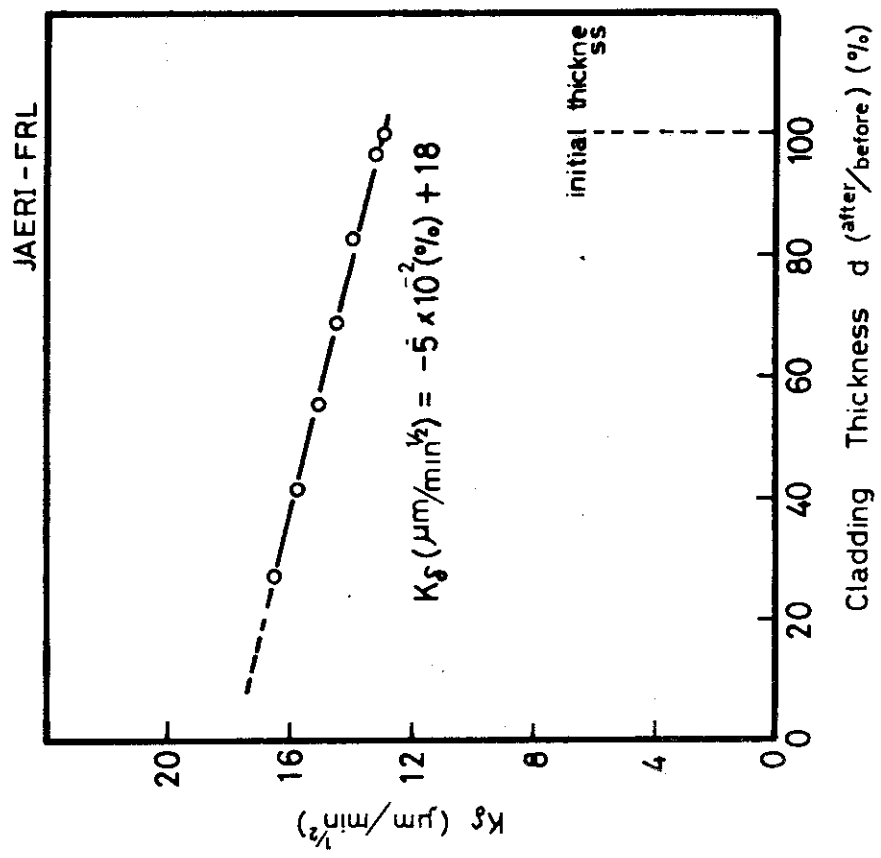


Fig.15 Variation of K_S with cladding thickness.