

JAERI-M

7 2 4 7

軽水炉の冷却材喪失事故時燃料被覆のふるまい

—燃料安全研究委員会, LOCA時
ジルカロイのふるまい専門部会報告—

1977年8月

燃料安全研究委員会
LOCA時ジルカロイのふるまい専門部会

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.

JAERI-M 7247

軽水炉の冷却材喪失事故時燃料被覆のふるまい

— 燃料安全研究委員会，LOCA時ジルカロイ
のふるまい専門部会報告 —

日本原子力研究所，燃料安全研究委員会
LOCA時ジルカロイのふるまい専門部会

(1977年8月8日受理)

水冷却炉の冷却材喪失事故時のジルカロイ被覆のふるまいに関して，ジルカロイ — 水蒸気反応，水蒸気反応試料の延性低下，被覆管のふくれ，計算コードによる安全解析についての国内データの整理，およびこれらに関係した代表的な外国データの紹介を行っている。

Behavior of zircaloy cladding under a postulated
loss-of-coolant accident condition.

----- A report of the working group on review of the behavior
of fuel cladding under a loss-of-coolant accident -----

Working group on review of the behavior of fuel cladding under
a loss-of-coolant accident, JAERI

(Received August 8, 1977)

This report is a review of studies on the behavior of zircaloy
cladding under a postulated loss-of-coolant accident condition.

Experimental data of zircaloy-steam reaction rate, embrittlement
of a steam-oxidized zircaloy and cladding deformation are summarized.
Sensitivity studies of various parameters on LOCA analysis by a
computer code are presented.

Keywords: LWR, LOCA, Steam, Zircaloy, Fuel Can Oxidation
Embrittlement, Swelling, Radiation Effect, Computer Code

目 次

はじめに	1
1. LOCA時被覆管の挙動及び安全解析に必要なデータ (川崎 了)	2
2. ジルカロイ-水蒸気反応	7
2.1 水蒸気流中での等温酸化試験 (川崎 了)	7
2.2 ジルカロイ-水蒸気反応計算コード (鈴木元衛)	15
2.3 その他の酸化現象	21
2.3.1 停滞水蒸気中でのジルカロイの酸化 (川崎 了)	21
2.3.2 酸化に及ぼす変形の影響 (古田照夫)	21
2.4 ORNLに於けるジルカロイ-水蒸気反応研究 (久保利雄)	27
2.5 参考文献	33
3. ジルカロイ被覆管の変形挙動	36
3.1 破裂挙動 (小松和志)	36
3.2 破裂迄の変形過程 (小松和志)	43
3.3 高温変形の基礎的研究 (古田照夫, 白井信行)	46
3.4 照射効果 (塩沢周策)	55
3.5 参考文献	59
4. ジルカロイ-水蒸気反応による脆化	62
4.1 ジルカロイ-水蒸気反応による被覆管脆化試験 (川崎 了)	62
4.2 ORNLにおけるジルカロイ管の機械的性質評価 (小松和志)	70
4.3 参考文献	74
5. LOCA時, 燃料被覆温度及び圧力計算コード	75
5.1 被覆温度の最高値に対する種々のパラメータの影響 (阿部清治)	75
5.2 燃料棒内圧変化 (阿部清治)	90
5.3 参考文献	101

はじめに

冷却材喪失事故時のジルカロイ被覆管の挙動については国内に於てもいくつかの機関で研究が行われているが、これらの研究成果を整理、評価することの必要が叫ばれ、1976年3月22日に成果整理のためのWorking group結成準備会が開催された。

この席で本Working groupは燃料安全研究委員会の専門部会とし、水冷却炉のLOCA時の被覆管挙動について国内で行われた研究結果と外国の文献調査結果をまとめる作業を行うことになった。

本部会は1976年度中に6回、1977年度に1回の会合が持たれ、本報告書の作成がなされた。

専門部会の委員及び委員会開催日は下記の通りである。

委 員

部会長	大久保 忠 恒	上智大学、機械工学科教授
委 員	阿 部 清 治	原研、安全性コード開発室
"	池 田 清 一	金材研、腐食防食研究部
"	川 崎 了	原研、燃料安全第3研究室
"	久 保 利 雄	日立製作所、日立研究所
"	小 松 和 志	三菱原子力、原子力開発センター
"	塩 沢 周 策	原研、反応度安全研究室
"	白 井 信 行	原子燃料工業、熊取事業所
"	鈴 木 元 衛	原研、燃料安全第3研究室
"	永 木 裕	動燃団、東海事業所
"	古 田 照 夫	原研、燃料安全第3研究室
"	本 間 功 三	" "
"	三 島 良 績	東京大学、原子力工学科教授

専門部会スケジュール

第1回	1976年 5 月 13 日	於原研本部
第2回	" 7 月 12 日	"
第3回	" 9 月 9 日	"
第4回	" 10月 22 日	"
第5回	" 12月 13 日	"
第6回	1977年 2 月 9 日	"
第7回	" 6 月 9 日	"

1. LOCA時被覆管の挙動及び安全解析用データ

冷却材喪失事故（LOCA）は工学的な経験からは発生原因を技術的に説明するのが難かしい程に起り難いと考えられているが、原子炉立地評価及びECCS設計評価のため考えられた設計基準事故（Design basis accident）である。いずれの評価に於ても、判定基準は、“燃料集合体が冷却可能な形状を保っていること”になるが、本部会がまとめた国内数研究グループの研究内容はいずれも上述の判定基準を念頭に置いている。

本部会の目的はこれらの研究結果を比較検討し易いように共通の尺度で整理することであるが、個々の整理項目とLOCA解析との関連を明確にするために、LOCA時の燃料挙動を概観し、安全解析に必要なデータの点検を試みる。

LOCA時には原子炉の一次冷却系配管の大きい破損により炉心から冷却水が急速に失われ、冷却材流出で水蒸気雰囲気になされた被覆は、二酸化ウラン燃料ペレット中に貯えられた熱及びFPの崩壊熱のために温度が上昇していく。このような事故が起ると、原子炉に備え付けられている非常用炉心冷却系が作動して、或る温度まで上昇後冷却されていくが、その間に燃料に起る可能性のある現象がFig. 1-1に模式的に示される。

Fig. 1-1-aは被覆の昇温に寄与する熱源、1-1-bはジルカロイ被覆の温度変化の1例であり、1-cはこのような温度変化によって燃料集合体に起る現象を示している。即ち、冷却水が流出して除熱され難くなったジルカロイの温度は上昇して強度が低下し、他方外圧低下による内外差圧の上昇によって、被覆管はふくれ、あるものは破裂する。又被覆管が900℃以上になると水蒸気との反応が著しくなる。この反応で、ジルカロイは酸素を吸収して脆化し、水素ガスを生成するが、この反応は発熱を伴うので、この熱も被覆の温度上昇に寄与する。一方非常用炉心冷却装置の作動によって炉心に注入された水により燃料は再冠水して冷却されるが、被覆管のふくれが大きな場合は冷却水の流路を閉塞して、再冠水を妨げる。又再冠水までに被覆の温度が非常に高くなったり、水蒸気との反応が著しい場合には、被覆管が脆化して冷却時の応力で崩壊したり、水素ガスが多量に発生するため、爆鳴気となって爆発の原因となることが検討対象となる。

LOCAの災害が原子炉系内のみに留まるか、周辺まで影響が広がるかは爆発等によって格納容器が損傷しないことと燃料集合体が長期にわたって非常用炉心冷却水によって冷却しきれるか否か、換言すれば冷却可能な形状を保ち得るか否かによって左右される。これらの判定基準として、我国では「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針」（通称ECCS性能評価指針）が定められているが、その要点のうちで被覆管に関係する部分をTable 1-1に示す。この表の左側の項目は指針を作る上での基本となる考え方、中央の点線で囲まれた部分は指針の要旨、右側の項目は指針を満足するか否かを解析するのに必要なデータである。この表のうち上段の項目は脆化-崩壊により冷却可能な形状を失うことを防止するものであり、2段目には冷却水注入不能でおこる被覆管の温度上昇-脆化の過程を防ぐことの意味も含んでいるので、これらの項目は互に関連を持っている。これらのデータのうち、ジルカロイ-水蒸気反応速度はBaker-Justの式を用い、又被覆管の内面酸化速度は外面と同様であると仮定するように、指針では定められている。

LOCA時被覆管挙動の研究は、ECCS性能評価指針の追試（又は指針の安全余裕度の確認）と、指針で具体的な数値が示されていない項目の定量的な値を求めることの2種類になる。前者に属するものは、ジルカロイ-水蒸気反応速度と反応材の延性試験であり、被覆管の膨張、破裂、肉厚減少等は後者に属する。

LOCA時、燃料の安全解析に影響する因子として、LOCA発生までの運転履歴がある。この項目に属する被覆管側の現象としては、

- (a) 中性子照射による原子の弾き出し
- (b) FPと被覆管の反応
- (c) ジルコニウムの(n, α)反応によるヘリウム生成
- (d) 正常な運転中に被覆管上におこる酸化物の生成

などが挙げられるが、(a)は500℃までに回復してしまい、(b)及び(d)は被覆管のふくれを下げる方向に働くので燃料挙動を安全側にすると考えられていた。又(c)については水冷却炉では被覆管変形量に影響することもあると考えられるが、この効果についての報告は少ない¹⁾ので、定量的な評価が出来る段階ではない。しかし最近LOCA現象をより明確に把握し、安全余裕度を定量化しようという考え方が有力になり、これと共にLOCA時燃料のふるまいに及ぼす事故前使用中の照射の効果も、もう一度調べられ始めた。²⁾

LOCA時のジルカロイ被覆管の挙動研究の内容は下記のように整理される。

(1) ECCS性能評価指針の追試又は安全余裕度の確認

- (a) ジルカロイ-水蒸気反応速度
- (b) (a)の反応をおこしたジルカロイの延性変化
- (c) 被覆管の内面酸化挙動

(2) 安全解析に必要なデータ提供

- (d) 被覆管の変形速度
- (e) 被覆管の破裂強度及び破裂変形量

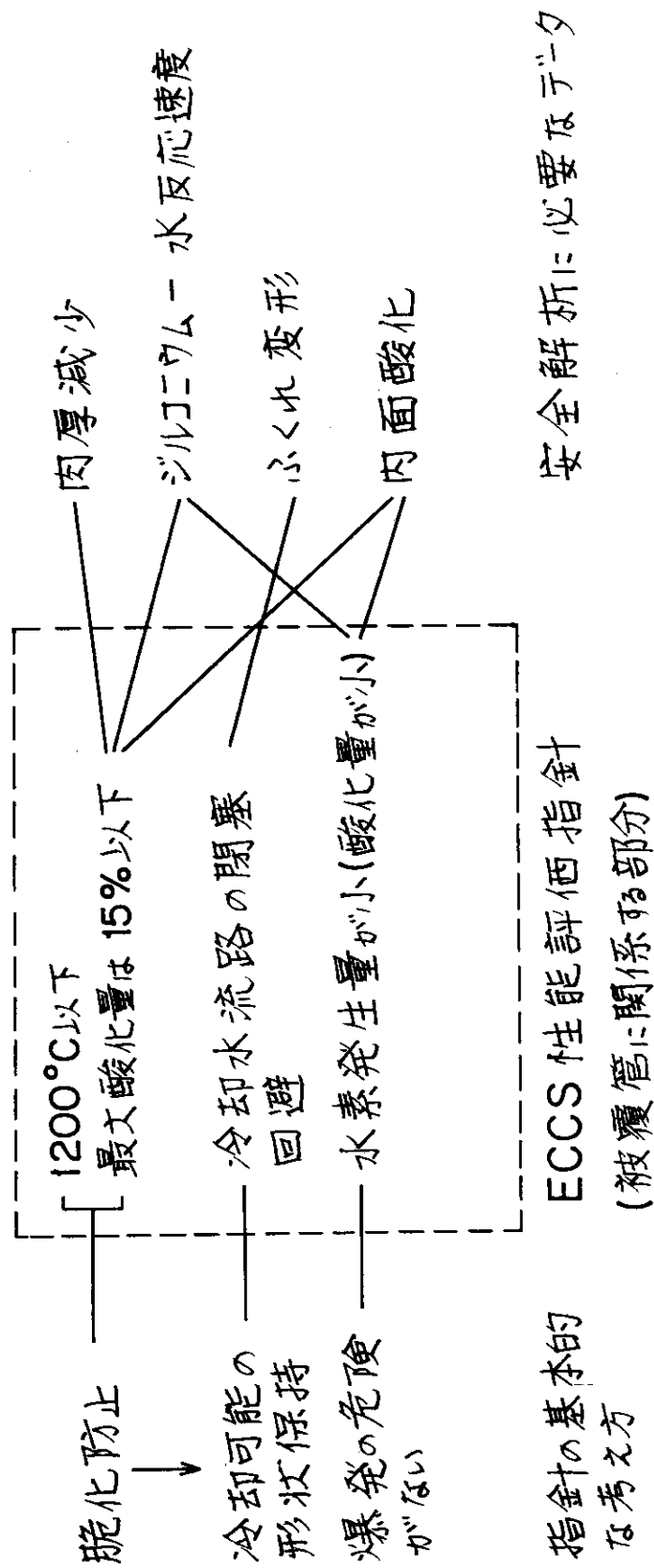
照射効果（又は正常運転履歴の影響）は上記(1)、(2)の各項目に影響するので、夫々の現象を定量的に求める場合に照射効果を考えなければならない。又上記(a)～(e)の各項目も相互に影響を及ぼす。その相互関係をFig. 1-2に示す。

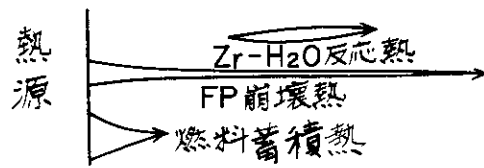
上述の項目の(d)、即ち被覆管の変形速度と照射効果についての国内の試験結果は本報告には取扱われていないが、一部の研究グループでは既にこれらの試験も開始している。

参考文献

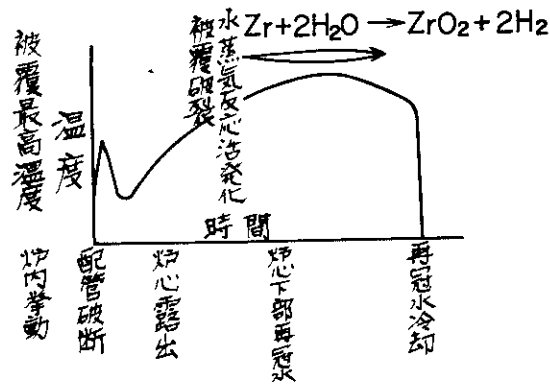
- (1) Furuta, T., Kawasaki, J. Nucl. Sci. Tech., II, 268 (1974)
- (2) 例えば Bauer, A. A. et al による BMI reports, 3-4 参照

TABLE 1-1 OUTLINE OF THE CRITERIA CONCERNING TO A FUEL CLADDING BEHAVIOR
FOR THE SAFETY EVALUATION ON A LOCA.

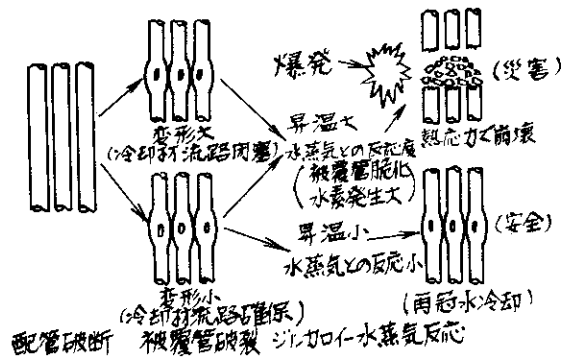




a 被覆温度上昇に寄与する熱源

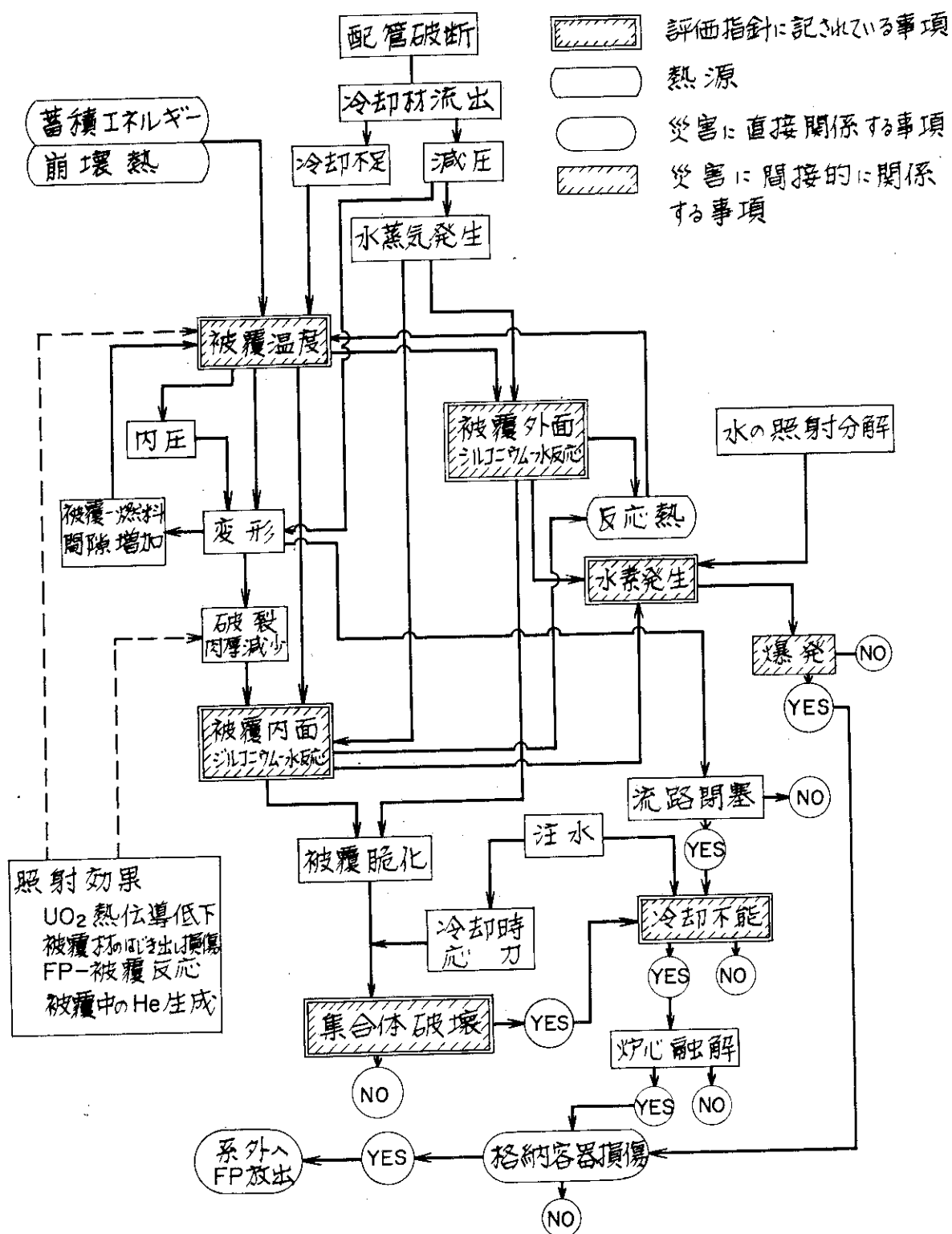


b LOCA時の炉内挙動および被覆温度模式図



c LOCA時の燃料集合体挙動

Fig.1-1 Illustrated figures of a fuel assembly behavior under a LOCA.



2. ジルカロイ-水蒸気反応

2.1 水蒸気流中での等温酸化

LOCA条件下でのジルカロイ-水蒸気反応試験は三菱原子力(MAPI)^{1) 2)} 金材技研(NRIM)^{3) 4)} 原研(JAERI)^{5) 6)} の3グループが行っているが、これらのグループの試験は、ECCS性能評価指針に記されたBaker-Just⁷⁾の値の安全余裕度の確認試験と、LOCA中に起る可能性のある特殊な条件下での反応実験に分けられる。この内前者は実験データを直接比較出来る条件で試験されており、本節ではこの部分について述べる。

水蒸気流中での等温酸化試験に用いた試料及び試験条件をTable 2-1に示す。酸化挙動に及ぼす水蒸気流速の影響についてはJAERIが $0.2 \sim 1.6 \text{ g/cm}^2 \cdot \text{sec}$ の範囲について試験しているが、この範囲内では流速の影響は見られなかった。⁵⁾したがってTable 2-1の諸実験はいずれも十分な水蒸気供給の条件下で行われたものと思われる。なおTable 2-1には比較のために代表的な外国の実験例も記載した。^{8) 9)}

ジルカロイ-水蒸気反応速度は重量増加、酸化膜厚、酸化膜+安定化 α 相厚のいずれもが、 950°C 以下でのJAERIの結果を除けば下記の式、即ち放物線則で表わされた。

$$R^2 = k \times t \quad \dots\dots\dots (1)$$

但し、 R : 反応量 (重量増, 酸化膜厚等), k : 定数, t : 反応時間である。

950°C 以下でのJAERIの結果はFig. 2-1に示すように対数則になったと述べているが、⁵⁾この範囲の実験値では、安定な酸化膜形成迄の過程を考慮すれば、3乗則としても処理し得ると思われる。なおORNL⁸⁾ KFK⁹⁾も 1000°C 以下では3乗則に従ったと述べている。

2.1.1 重量増加

前述のようにJAERIの 950°C 以下を除けば、国内の試験結果はいずれも下記の式で示される。

$$w^2 = k_w \times t \quad \dots\dots\dots (2)$$

但し、 w : 重量増加, k_w : 反応速度定数, t : 反応時間である。この式の k_w の温度依存性はFig. 2-2に示され、この図から明らかなように、 k_w は

$$k_w = k_{w0} \exp\left(-\frac{Q_w}{RT}\right) \quad \dots\dots\dots (3)$$

の式で表わすことが出来る。(3)式の k_{w0} 及び Q_w もTable 2-1に示す。又Fig. 2-2から k_w はMAPIの値が最も高いが、この場合でも約 1000°C 以上ではBaker-Justの値より低く、温度が増すに従ってこの差が益々広がって行く。

反応速度に及ぼす予備酸化の影響についてはNRIM⁴⁾とJAERI⁵⁾が調べている。NRIMは 400°C 、 88 kg/cm^2 の水蒸気中で試料を12時間酸化させ、 $1 \mu\text{m}$ (重量増より計算)の酸化膜を作ったが、この酸化膜は $900 \sim 1450^\circ\text{C}$ での反応速度に影響を与えなかった。⁴⁾JAERIは 300°C の高温高圧水中で74時間試料を酸化させ、約 $0.5 \mu\text{m}$ (重量

増より計算)の酸化膜を作ったが、この予備酸化により900及び950℃の水蒸気との反応速度は低下した。⁵⁾ Fig. 2-1にこの結果を示す。しかし第4章で述べるように、この予備酸化により水蒸気との反応が低下しても、反応試料の延性低下は非予備酸化で水蒸気反応時間が同じの試料と同じであった。なお1000℃以上での水蒸気との反応速度は予備酸化材も非予備酸化材も同じであった。1000℃以下での反応速度に対する予備酸化の影響についてNRIMとJAERIの結果は異っていたが、この差異が前者は水蒸気中、後者は高温水中で予備酸化したことに起因するのか、他に原因を求めるべきかは今のところ不明である。

2.1.2 酸化膜及び安定化 α 相の厚さ

水蒸気と反応したジルカロイには、表面から順に酸化膜(ZrO_2)と酸素を多量に含んだ α 相(安定化 α 相)の二層が形成されるが、この二つの層は脆く、試料の延性には寄与しないと言われている。これら二層の実際の厚さは現在の「ECCS性能評価指針」には直接使われていないが、Hobson等¹⁰⁾の提案した F_w 算出には用いられる値であり、水蒸気反応試料の延性に密接に関係しているため、国内でも上記の各グループが測定している。

国内で測定された酸化膜厚(δ)と酸化膜+安定化 α 相厚(ξ)はJAERIの950℃以下の δ を除けば、前述のように(1)式の形、即ち下記の放物線則で示される。

$$\delta^2 = k_\delta \times t \quad \dots\dots\dots (4)$$

$$\xi^2 = k_\xi \times t \quad \dots\dots\dots (5)$$

この k_δ , k_ξ の温度依存性をFig. 2-3及び2-4に示すが、これらは夫々

$$k_\delta = k_{\delta_0} \exp\left(-\frac{Q_\delta}{RT}\right) \quad \dots\dots\dots (6)$$

$$k_\xi = k_{\xi_0} \exp\left(-\frac{Q_\xi}{RT}\right) \quad \dots\dots\dots (7)$$

の形に書かれ、 k_{δ_0} , Q_δ , k_{ξ_0} , Q_ξ の値もTable 2-1に記されている。

k_δ は低温側では相互の違いは小さいが、温度上昇と共に差が広がっていく。これに反し、 k_ξ のばらつきは温度によってあまり変化しない。安定化 α 相は酸化の進行と共に不均一に成長(α -incursion)して測定値にばらつきが出やすいので、この事情を考慮すればFig. 2-4はかなり良く一致したと言えよう。

δ 及び ξ の成長と反応時間の関係をFig. 2-5~10に示す。JAERIの900及び950℃の δ が放物線則に従わないのに ξ が放物線則になることは奇異に見えるが、これ以上の考察は現在のところなされていない。

Table 2-1 Zircaloy - Steam Reaction Behavior

Research	Specimen	Temp. Range (°C)	Steam Press. (atm)	Transient time or Heating rate	Weight gain		Thickness of ZrO ₂		Th. of ZrO ₂ +α		Ref.
					Q _w (kcal/mol)	K _{wp} (g ² /cm ⁴ .sec)	Q _δ (kcal/mol)	K _{δ0} (μm ² /sec)	Q _ξ (kcal/mol)	K _{ξ0} (μm ² /sec)	
MAPI	Zry-4	920~1415**	1	<1min	38.0	0.208	39.7	9.60×10 ⁶	48.4	9.10×10 ⁸	1), 2)
NRIM	Zry-2	900~1450	1	<1min	37.1	0.141	37.3	4.61×10 ⁶	37.6	2.65×10 ⁷	3), 4)
JAERI	Zry-4	900~1300*	1	<1min	40.7	0.468	35.9	2.15×10 ⁶	39.0	3.06×10 ⁷	5), 6)***
Baker-Just	Zr	1000 ^{vm.p.}			45.5	4.12					7)
ORNL	Zry-4	~1500*			39.9	0.181	35.9	1.13×10 ⁶	41.70	3.41×10 ⁷	8)
KFK	Zry-4	800~1300*		<50°C/sec	41.7	0.262	40.2	3.91×10 ⁶	43.9	8.30×10 ⁷	9)

* 1,000°C以下では放物線則に従わないので表中の値は1,000°C以上で適用される。

** 重量増加については950~1,320°C, ZrO₂及α相厚については920~1,415°Cで行っている。*** Q_ξ, K_{ξ0}は ref.(6) 以後再検討した値である。

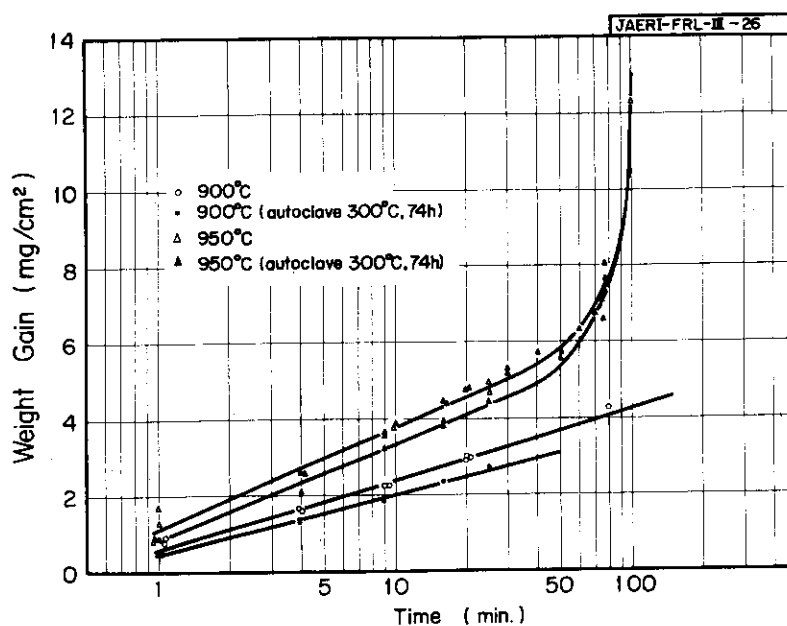


Fig.2-1 Oxidation of Zircaloy-4 as a Function of Holding Time in 900°C and 950°C Steam⁵⁾

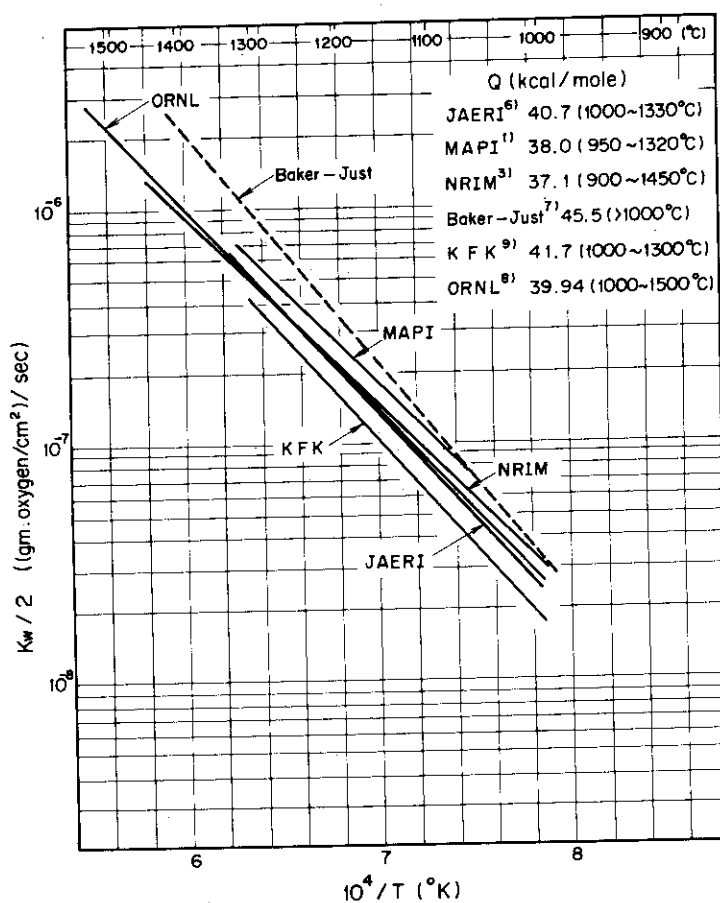


Fig.2-2 Parabolic rate law constants for zircaloy-steam reactions as functions of temperature. (weight gain)

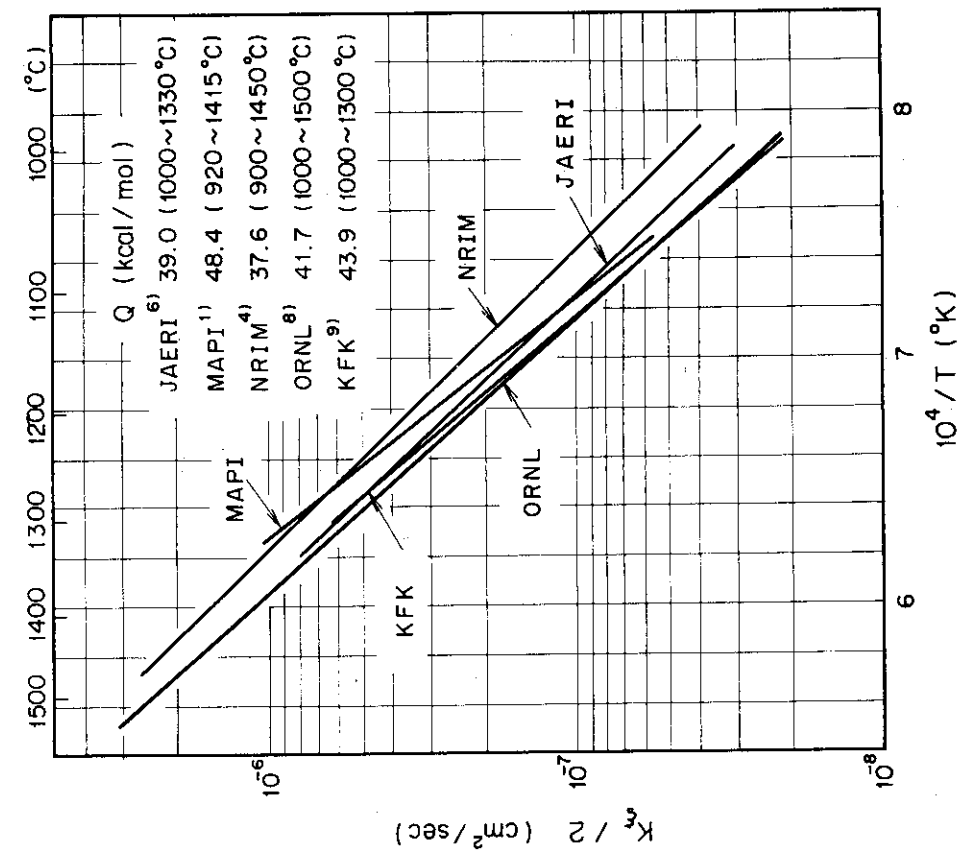


Fig.2-4 Parabolic rate law constants for $\text{ZrO}_2 + \alpha$ phase thickness as a function of temperature

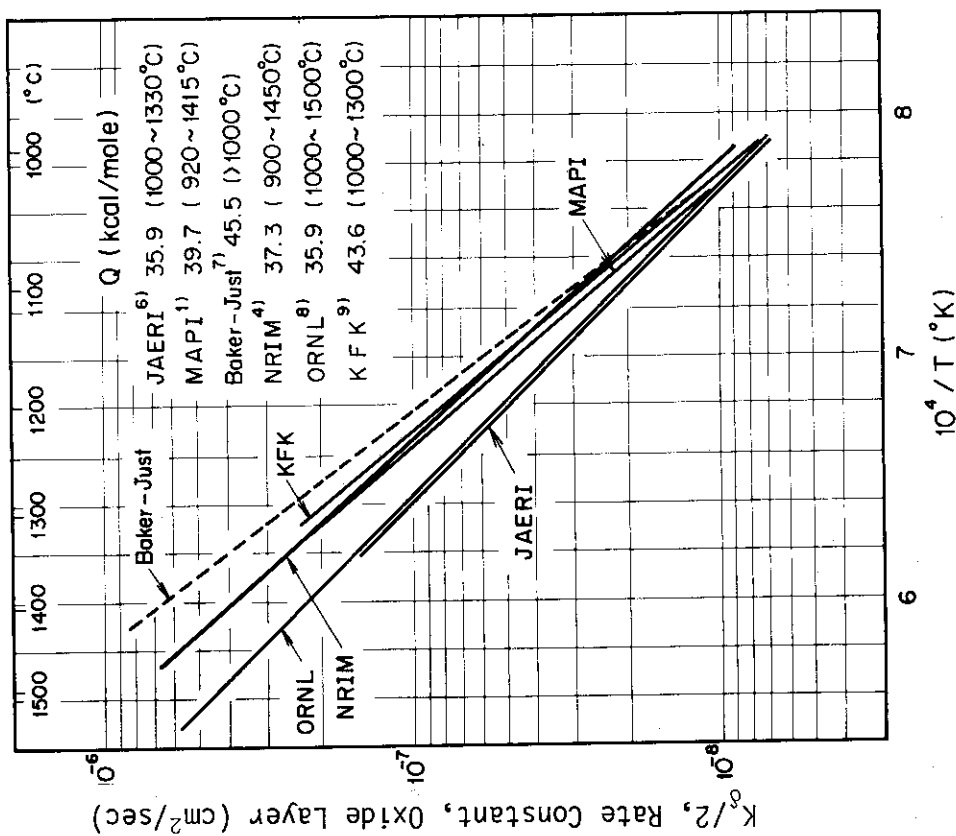


Fig. 2-3 Parabolic rate law constants for ZrO_2 thicknesses as functions of temperature.

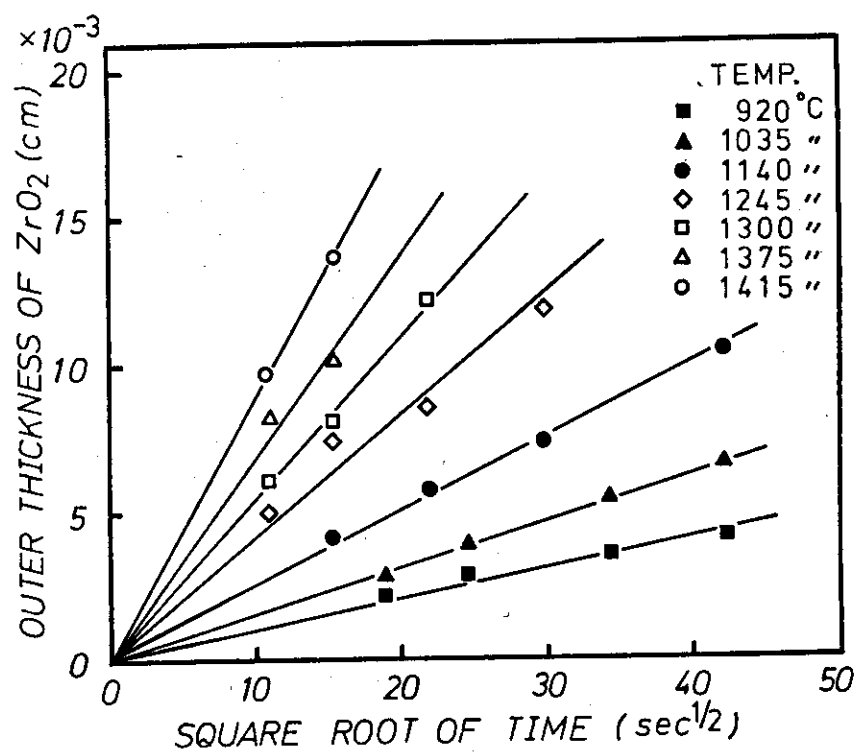


Fig. 2-5 Thickness of ZrO₂ (δ) plotted against the square root of time.¹⁾ (MAPI)

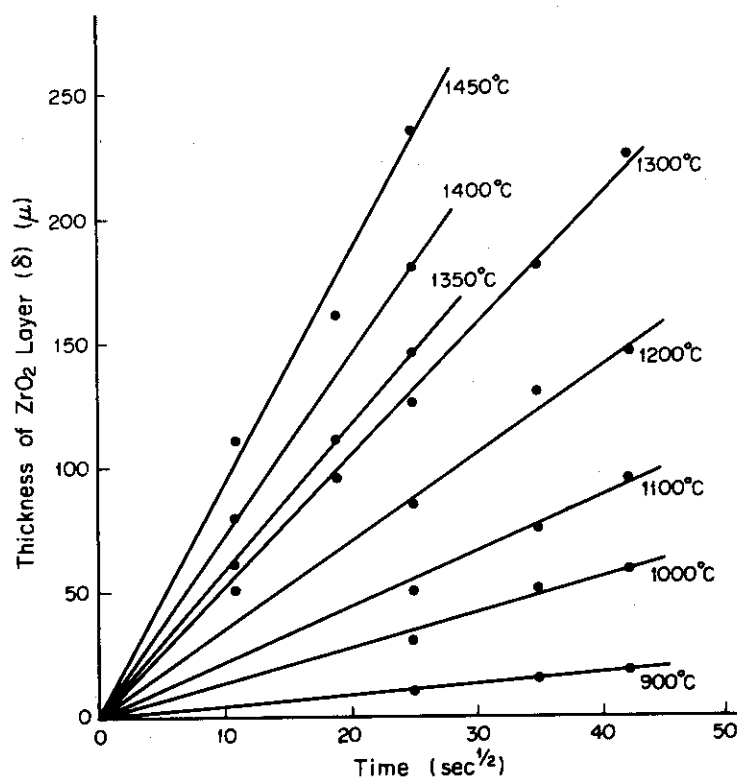


Fig. 2-6 Thickness of ZrO₂ (ξ) plotted against the square root of time.⁴⁾ (NRIM)

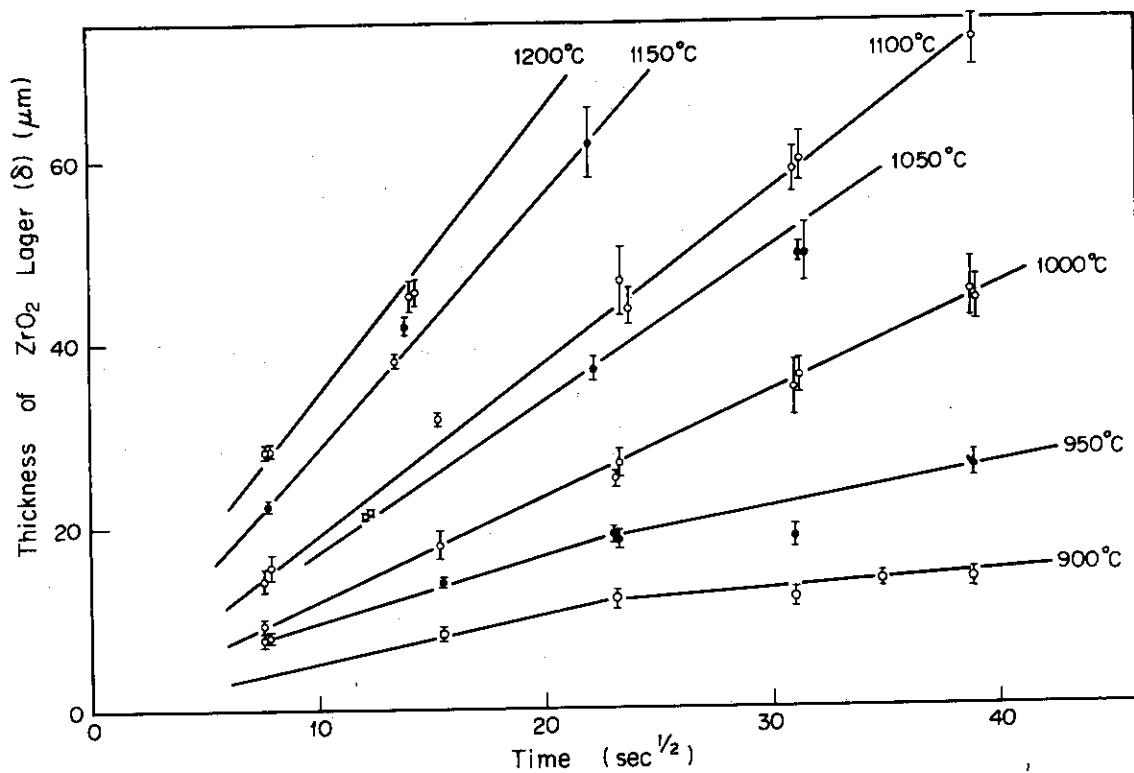


Fig. 2-7 Thickness of ZrO_2 (δ) plotted against the square root of time (JAERI)

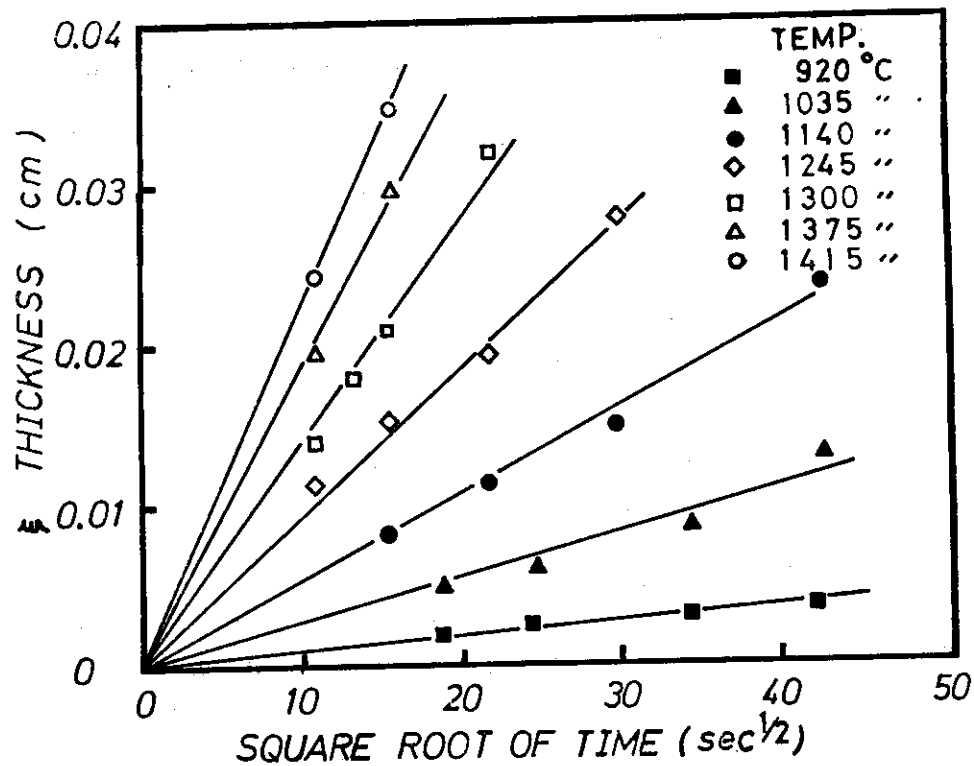


Fig. 2-8 Thickness of ZrO_2 + stabilized α phase (ξ) plotted against the square root of time.¹⁾ (MAPI)

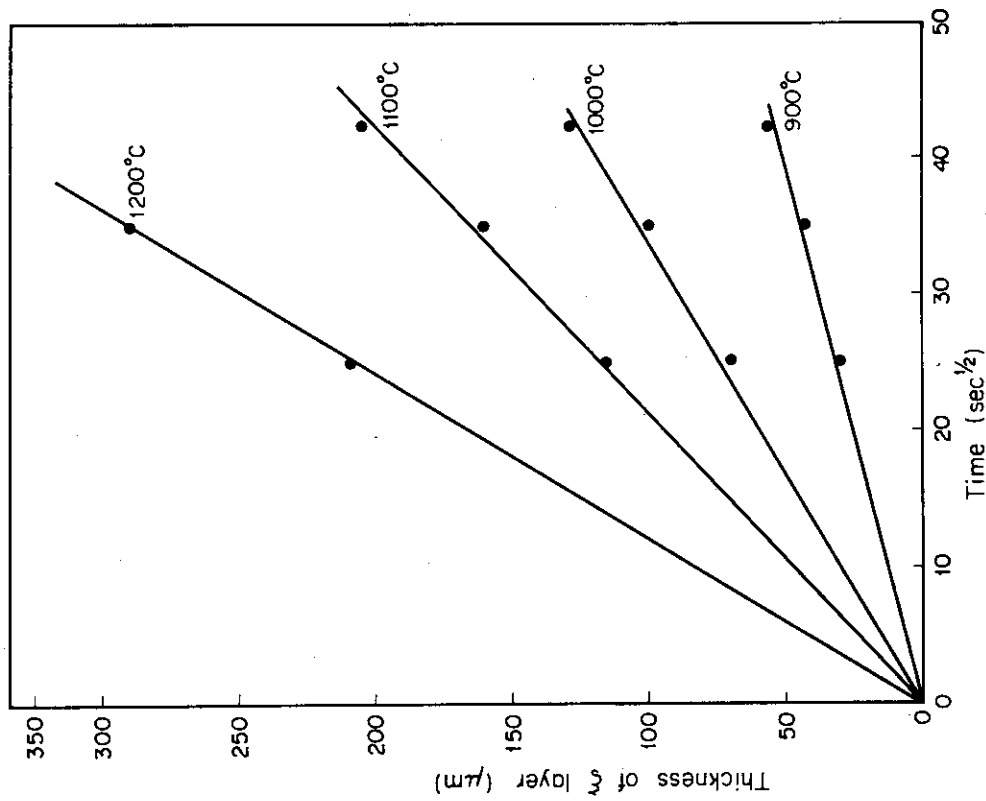
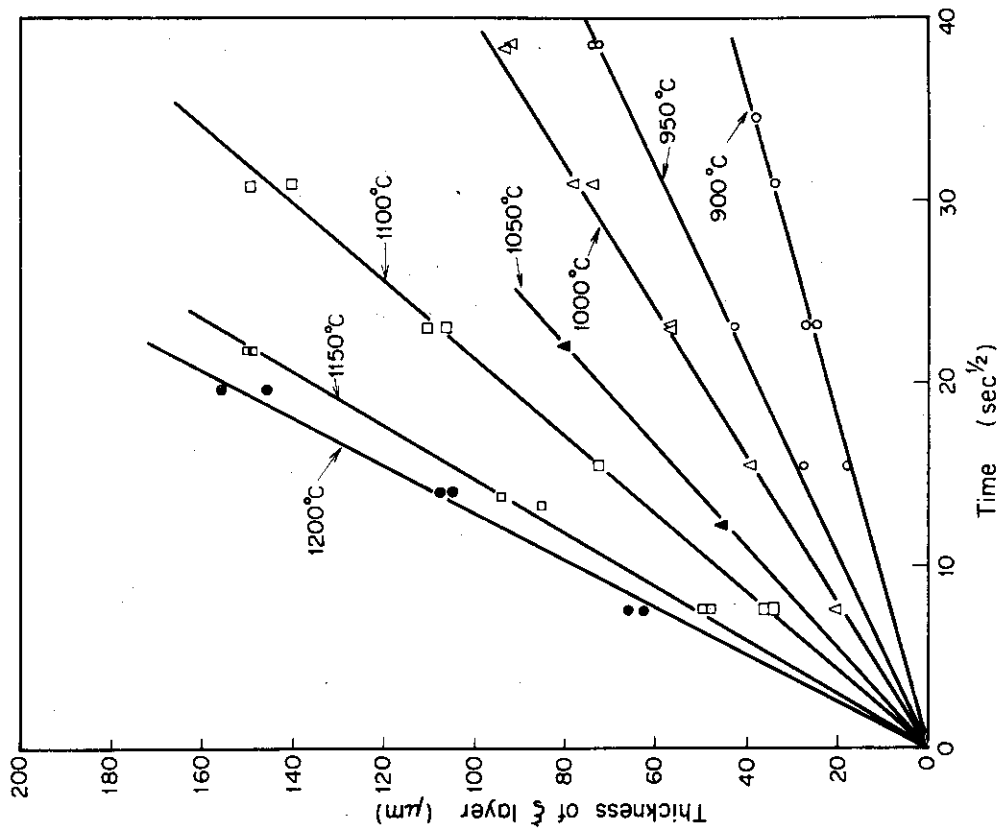


Fig. 2-9 Thickness of $\text{ZrO}_2+\alpha$ phase (ϵ) plotted against the square root of time. (NRIM)

Fig. 2-10 Thickness of $\text{ZrO}_2+\alpha$ phase (ϵ) plotted against the square root of time. (JAERI)

2.2 ジルカロイ-水蒸気反応計算コード

2.2.1 現 況

ジルカロイ-水蒸気反応による被覆酸化の計算コードの我が国に於ける開発状況については、JAERI以外の情報は殆んどなく、又公式の場での報告もJAERI以外には見当たらない。^{*}したがって、本節ではJAERIでの水蒸気反応解析用のコード開発状況を述べる。

Zr-水蒸気反応によるジルカロイ被覆管の酸化を模擬する計算コードは、複雑な現象のどこまでを計算するかによって分類され、それぞれ一長一短がある。現在、全酸素濃度分布を計算するPRECIP系と、単に酸化物、 δ 層の厚みを計算するPARABOおよびこれらの中間的な機能を持つコードがあり、いずれも稼動しうる状態にある。今後の課題としては、基本的な方向として、これらのコードの実験による検証を行い、モデルや物性値の最適化をはかっていくこと、及びできれば他のコード系との相互連携を求めていくことが考えられる。そして、最終的には、酸化に伴う諸パラメータと被覆管の脆化挙動との間に対応を見出し、より合理的な脆化評価の方法を見出すための一手段としたい。

2.2.2 PRECIP-I

計算コードPRECIP-Iの機能は、Fig. 2-11に図示されている。このコードは、SIMTRAN-I¹¹⁾を改良したものであり、酸化物、 α 、 β 相のそれぞれについて、熱伝導方程式と酸素の拡散方程式を差分法によって解くので、物性値が正確ならば、精度の高い計算が出来る。SIMTRAN-Iから改良した主要な部分は、被覆の温度が下降していく場合の、 α - β 相境界の境界条件の処理法である。すなわち、PRECIP-Iでは、冷却中に β 相内に析出する α 相を考慮した処理法がなされている点が、SIMTRAN-Iとの相異点である。^{*}Fig. 2-12、Fig. 2-13に、二つのコードのテストラン結果を示した。Fig. 2-12において、被覆管の温度履歴、酸化物相と α 相の厚み変化が示されている。ただし、 α 相の厚み変化を示す曲線のうち、実線はSIMTRAN-I、点線はPRECIP-Iの、それぞれ計算結果である。Fig. 2-13の曲線は、Fig. 2-12に示した計算の最後の時点における、 α 相と β 相の酸素濃度分布の計算結果であり、実線はSIMTRAN-I、こまかな点線はPRECIP-Iの、それぞれ計算結果である。

PRECIP-Iに組込まれた物性値の中で、酸素の拡散定数、Zr-O系平衡状態図に若干の誤りがあるようであり、拡散定数については、ORNLで詳しく調べている。¹¹⁾S. Malang によれば、SIMTRAN-Iの予測はかなり良く実験結果と一致するようであるが、やはり冷却時の計算結果についてはおかしい値がでている。¹²⁾

* 原子炉の安全解析コードの一部としてこの反応を扱ったものはいくつか有るが、それらは本節で取扱うコードとは使用目的が異なる。

* β 相中の酸素溶解度は温度によって変り、冷却中に β 相中の酸素は溶解度を越え、一部は α 相として析出する。本計算コードでは α - β 相境界附近での酸素の移動を α 相析出(Precipitation)を考慮に入れて処理しており、コードの名称もこれに由来する。

PRECIP-Iは、物性値の最適化と実験による検証を経ねばならない。計算に使用されるデータの中で計算結果に大きな影響を与えるものを測定の難易を別にして列挙すると、次のようになる。

物性値としては、

- 1) 酸素の拡散定数（酸化物， α 相， β 相内の値）
- 2) Zr-O系平衡状態図のZr側部分
- 3) ZrO₂の密度，熱伝導率，比熱

また、計算結果の検証に必要な実験データを、その測定の難易を別にして列挙すると、

- i) 試料の温度履歴，(I_s , I_r)
- ii) 酸化物， α 相の厚み (I_s , T_r)
- iii) 増加重量 (mg/cm^2) (I_s , T_r)
- iv) ジルカロイ-水蒸気反応による試料の延性変化
- v) β 相中の酸素量（全酸化量又は濃度分布）(I_s , T_r)
- vi) α 相中の酸素量（全酸化量又は濃度分布）(I_s , T_r)

ただし、 I_s は、等温反応、 T_r は温度変化する場合における値であることを示す。

筆者は現在、上記 i) ~ iv) の T_r の値を求める実験を遂行中である。

2.2.3 SIMDOX-I

SIMTRAN-Iに、二酸化ウランと被覆管の発熱とそれらの冷却材への伝熱を計算して、被覆管の温度変化を自ら計算するサブルーチンを付け加えたコードが、SIMDOX-Iである。このコードは稼動しうる状態にあるが、しかし、被覆管のふくれの扱い方、ギャップ熱伝達係数の扱い方に問題があり、PRECIP-Iでの改良点をもとり入れて、修正した、SIMDOX-IIを作成する予定である。一本の燃料棒の軸方向単位長さについての酸化・発熱を計算するこのコードは、放射伝熱のある集合体の酸化・発熱を模擬できないし、いわんや、炉心全体の挙動と燃料棒との相互作用も全く考慮の外にある。（ただし、入力として、放射伝熱量の時間的変化を用いることができる。）SIMDOX-IIは、PRECIP-Iの長所を十分に活用しつつ、単一の燃料棒についての計算という限界の中で、できる限り意味のある計算結果を出すように運用していきたい。このコードの計算結果も、用いた物性値に当然左右されるが、伝熱計算のサブルーチン以外はすべて実験結果との比較によって修正されたPRECIP-Iと入れ替える予定である。

2.2.4 PARABO

このコードは、放物線則 $w = k\sqrt{t}$ (1)

にしたがって変化する量（酸化物， α 相， β 相の厚み，重量増加など）を、(1)式を差分式にして計算するコードである。ただし、(1)式においては、 w は反応量、 k は速度定数（温度の関数）、 t は時間である。温度履歴は、インプット・データで指定し、温度変化のある反応も扱う。(1)式の差分式は、

時刻 t に於て $w_i = k_i \sqrt{t}$

$$\text{時刻 } t + \Delta t \text{ に於て } w_{i+1} = w_i + \frac{k_i^2}{2w_i} \Delta t$$

である。

このコードの問題点は、下記の2項目である。

- A) 計算値の精度は、反応速度 k_i の確かさに依存する。
- B) 過渡温度履歴にしたがって計算する場合には、 α 相、 β 相の酸素の固溶度が温度によって変るために(2)式は原理的には誤った近似式であり、時間メッシュ及び厚み方向メッシュの切り方と無関係に誤差を生む。しかし、反応により吸収された酸素の大部分が酸化物 (ZrO_2) に含まれ、且つこの組成が温度によって殆んど変化しないことから、重量増加や酸化物厚さについてはかなりよい近似をするのではないかと期待も出来る。

JAERIでは、等温酸化試験で求めた反応速度定数 (k_i) を用いた過渡時の反応量の (重量、酸化物厚等) の計算値と実測値の比較を現在行っているが、MAPIでは酸化物厚について同様の方法での比較を既に行っている。¹³⁾ 彼等の比較では5%以内のばらつきで計算と実測値は一致していた。

このコードの長所は、プログラムが単純で作成が容易なことであり、計算時間も短い。

2.2.5 DIFFUS, TRANOX¹⁴⁾

- i) DIFFUS…………このコードは、等温酸化の場合の β 相中の酸素濃度分布を、差分方程式を解くことによって算出する。 ξ 層 (酸化物 + α 相) の厚み変化は、実験式を入れて求める。
- ii) TRANOX…………このコードは、温度変化する場合について、 α 、 β 相の厚さ、それぞれの酸素濃度分布を、差分方程式を解くことによって算出する。酸化物の厚み変化は、実験式を入れることにより求める。

これら二つのコードは、いずれも限定された条件下でしか計算遂行ができないので、今後は、PRECIP-I に対する必要な限りでの比較のための補助的計算に用いるにとどめる予定である。

2.2.6 まとめ

コード開発の目的については、緒言において述べたとおりであるが、ここで再度まとめてみれば、次のようになる。

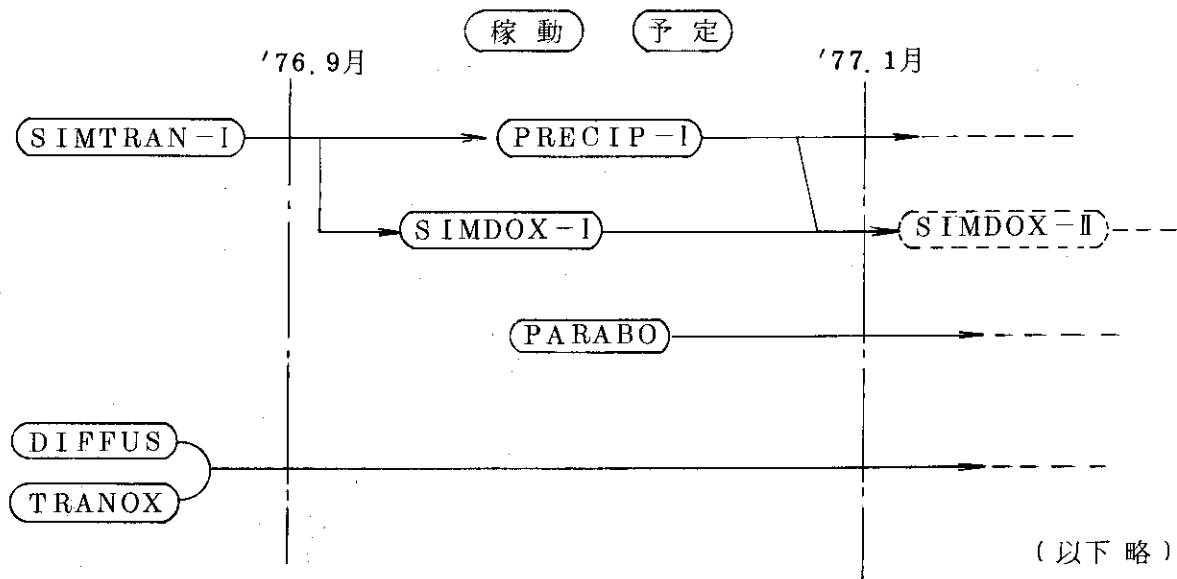
1. 実験解析をする。
2. ジルカロイの延性変化の実験データと、酸化量および β 相内酸素濃度分布との対応を見出し、
3. 任意の仮想条件下での酸化反応を模擬して延性変化を予測する。

現在の段階は、各コードが一応骨格ができ上って稼動しうる状態にあること、一方それらの検証は未だ実施されていないこと、そのための実験データ及び延性変化の実験データを集めている (実験を遂行している) 状況にあることと言えよう。

検証に必要なデータについては、各コードとも、2.2.2のPRECIP-Iの箇所で述べたもので現在のところ必要かつ十分である。また、延性変化のデータは、どれだけ多く集まっても

集め過ぎや無駄にはならないと考える。

§ 7. コードの流れ図



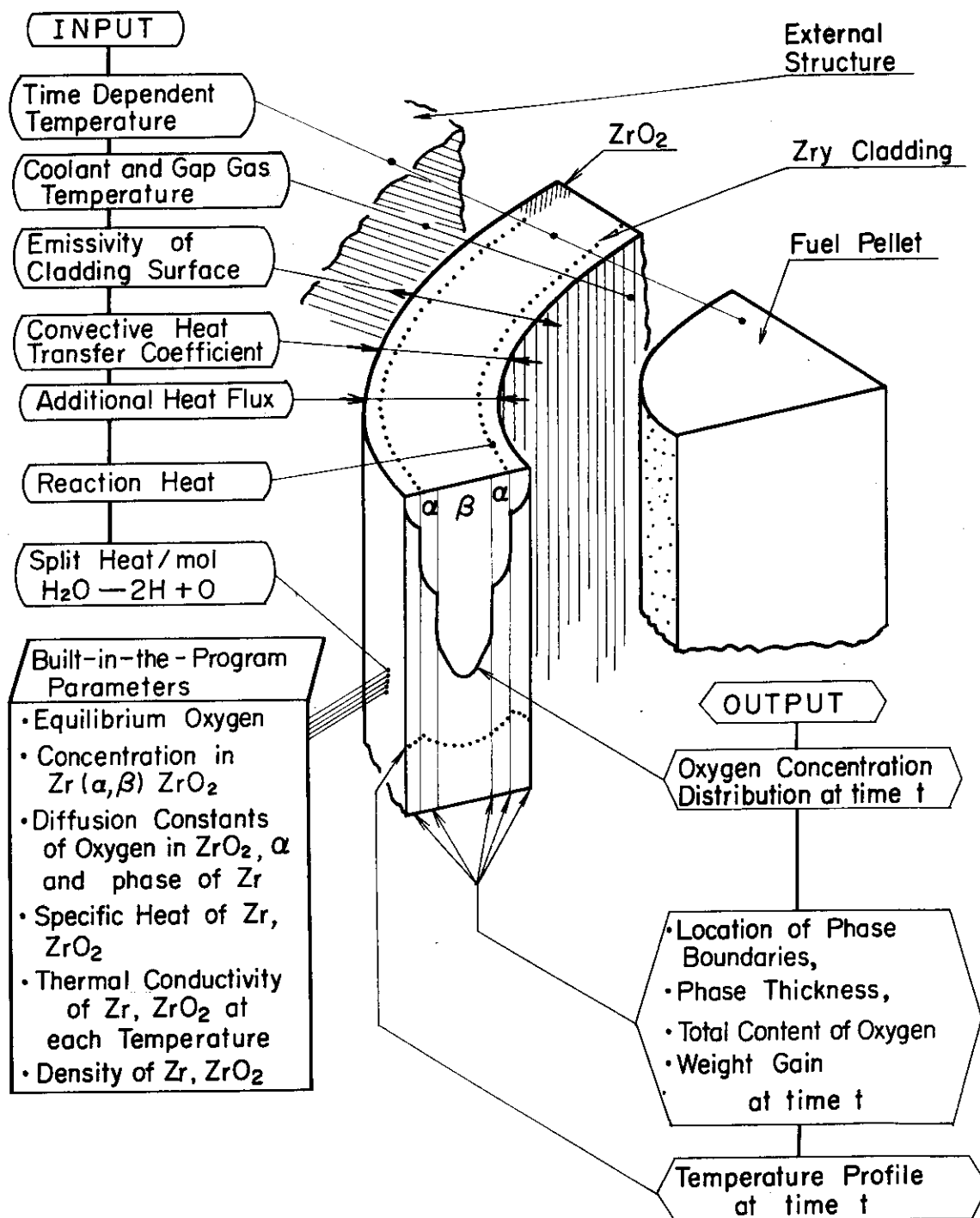


Fig. 2-11 Schematic Representation of PRECIP-I¹⁴⁾

A Computer Code for the Simultaneous Calculation of Oxygen Distributions and Temperature Profiles in Zircaloy during Exposure to High Temperature Oxydizing Environments

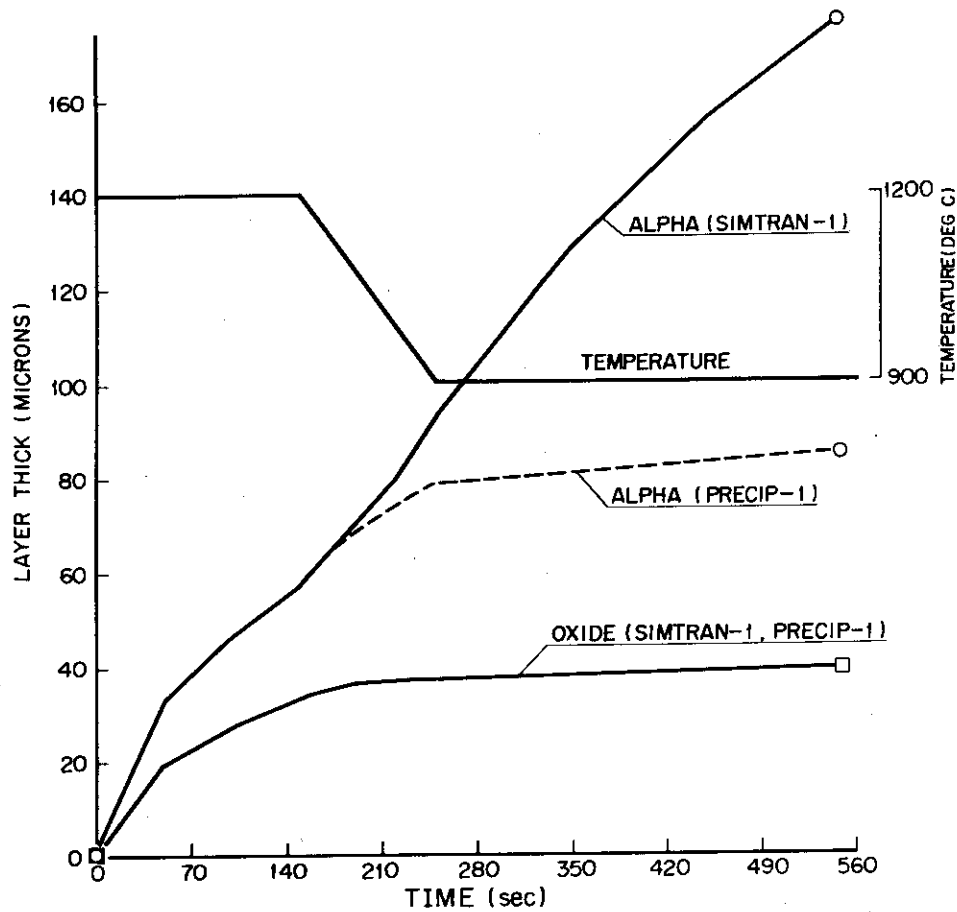


Fig. 2-12 Comparison of the oxide and alpha thicknesses calculated by the SIMTRAN-1 and the PRECIP-1.¹⁴⁾

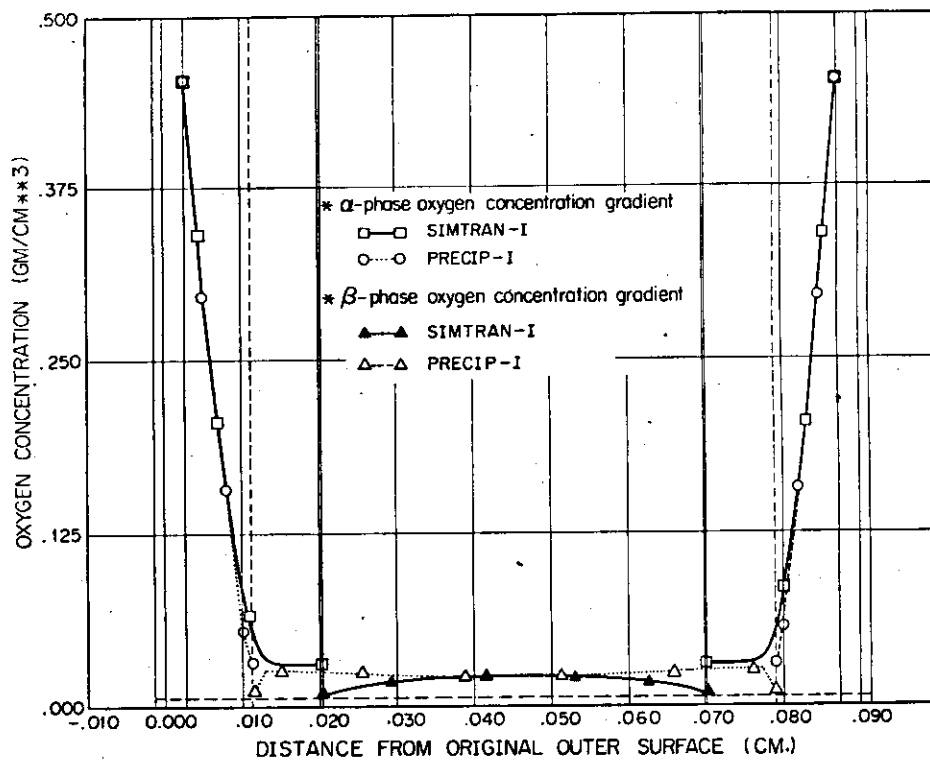


Fig. 2-13 Comparison of the oxygen distributions calculated by the SIMTRAN-1 and the PRECIP-1.¹⁴⁾ (solid line; SIMTRAN-1, dotted line; PRECIP-1)

2.3 その他の酸化現象

LOCA時のジルカロイ被覆管は雰囲気の水蒸気で酸化されるが、燃料棒内圧のために変形や破裂を起し、2.1および、これを温度の過渡条件に置き直した2.2の場合と異った酸化条件で反応が進行する部分も考えられる。即ち、被覆管破裂後の管内表面の酸化は破裂開口部からの水蒸気流入速度の影響を受け、又破裂部近傍ではジルカロイ-水蒸気反応開始と前後して著るしい変形を起す。JAERIでは内圧をArで加圧した模擬燃料棒を水蒸気流中で加熱し、被覆管内表面や変形の著しい部分の外面の酸化現象が2.1で取扱った静的条件下での酸化と異なることを見出した。^{15), 16)}

この内被覆管内表面は破裂部よりの侵入水蒸気の流れが少なく、水蒸気供給不足状態での酸化と考え、これを裏付けるため、停滞水蒸気中での酸化試験を行った。

又後者については、酸化開始時に著るしい塑性変形が伴うためと推測し、この確認試験も行った。

本節ではこの二つの模擬試験結果について述べる。

2.3.1 停滞水蒸気中でのジルカロイの酸化¹⁷⁾

JAERIでは、模擬試験棒の水蒸気中加熱試験で、被覆管破裂後に、内面には外面と同様に緻密な酸化物が出来る場合と多孔質で厚い酸化物が出来る場合の有ることを見出し、この多孔質の酸化膜が供給水蒸気が不足した状態で生成したものと推測した。そしてこの推測を確かめるために水蒸気量が少なく、且つ停滞している条件下でジルカロイの酸化挙動を調べた。¹⁷⁾

Fig. 2-14はこの実験に使用した装置の模式図で、装置の内容積は約300mℓである。この装置に試料を取付け、一旦真空にした後、1mℓの水を入れ、停滞水蒸気中でジルカロイ管を酸化させ、重量増加から酸化量を調べた。Fig. 2-15はこの試験結果と水蒸気流中の重量増加を比較したものであり、停滞水蒸気中での酸化量が少ないことが認められた。Fig. 2-16は1000℃の停滞水蒸気中で10分間酸化させた場合の重量増加と酸化膜厚との関係を示したものであるが、酸化増量が少ない場合には厚い酸化膜が形成されている。但しこの厚い酸化膜は多孔質であり、緻密な酸化膜の場合の厚さは水蒸気流中で出来るものよりも薄い。

上述のように停滞水蒸気中での酸化速度は水蒸気流中より速くはならないが、この反応では酸素の外に水素も吸収され、水素吸収量が多い場合には、酸化量が少ないのかかわらず脆くなる場合もある。

2.3.2 酸化におよぼす変形の影響¹⁸⁾

冷却材喪失事故時の燃料棒は変形と破裂を生じながらや生じた後に著るしい酸化を受ける。変形中に酸化が起る場合の酸化速度は、変形のない場合のそれに比べ加速される。¹⁹⁾そこで、燃料棒に変形と破裂が生じた後で著るしい酸化が生ずる場合、とくに現在の酸化評価で問題になる被覆管の肉厚減少との関連で酸化現象に対する知見を得ることが重要であると考えられる。

燃料棒の変形および変形温度とそれに引続く著るしい酸化の現象を解明するため、水蒸気中で高温引張試験を行った試料と引張試験を行わない試料を同時に高温酸化させ両試料の酸化膜

厚の比較を試みた。Fig. 2-17 に試験装置および試料の模式図を示す。引張試験機に水蒸気反応槽を組み込み、変形を与える試料と与えない試料を同時に図のように装填し、圧力 1 気圧、流量 $1.3 \text{ g/cm}^2 \cdot \text{min}$ なる水蒸気を流し、所定の温度におき歪速度 1.7 mm/mm/min で引張変形を一つの試料に与えた。試料の昇温速度が約 3°C/sec であり、引張試験時間が 10 秒以内であるから、引張変形中に試料は最大 30°C ほど温度上昇を受ける。引張破断後試料は 1000°C で 5 分間保持された後空冷された。酸化膜厚測定は顕微鏡で行い、測定位置は破断試料で破断部先端より 5, 10 および 15 mm における位置、一方非破断試料は破断試料の測定位置に対応する各位置である。

酸化膜厚と測定位置の関係を Fig. 2-18 に示す。変形を与えない試料の酸化膜厚は測定位置に依存せずほぼ一定の値となる。一方、変形を与えた試料では破断部から離れるにしたがって、酸化膜厚は薄くなる。図では破断試料の測定位置における変形の有無による酸化膜厚の比が示されている。この結果、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遠ざかるにつれて小さくなり、変形が大きいほど変形が酸化を加速していることを表わしている。また、変形温度が低くなるとともに酸化膜厚比は大きくなるから、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。

Fig. 2-18 で酸化膜厚が変形に依存していることから、水蒸気中で破裂とその後酸化を行わせた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との関係を求めた。結果を Fig. 2-19 に示す。各点の肉厚は初期肉厚 $725 \mu\text{m}$ に対する百分率で表わされ、値が小さいほど大きな変形を受けたことを意味している。なお、模擬燃料棒の破裂温度は $780 \sim 870^\circ\text{C}$ なので、図の考察に際しては酸化加速に対する変形温度の影響について幾分かの考慮が必要であろう。

酸化膜厚の値にはかなりバラツキが認められるが、一般的に大きな変形が与えられた場合の酸化膜厚は厚くなる。模擬燃料棒に与えられた温度履歴は図中に示された曲線となるため、酸化反応温度 1000°C で反応時間を 6.3 および 8 分としたとき、等温酸化測定から求められた JAERI⁵⁾ および Baker-Just⁷⁾ の反応量を計算し、その反応量がすべて酸化膜になると仮定した値を同図中に示した。計算からもっとも酸化膜厚が厚くなる Baker-Just 式で反応時間 8 分の膜厚よりも破断面各点で求められた膜厚の方が厚く、変形が与えられた場合にも同じ酸化膜が形成されたと仮定すれば、変形により酸化が加速されたことになる。

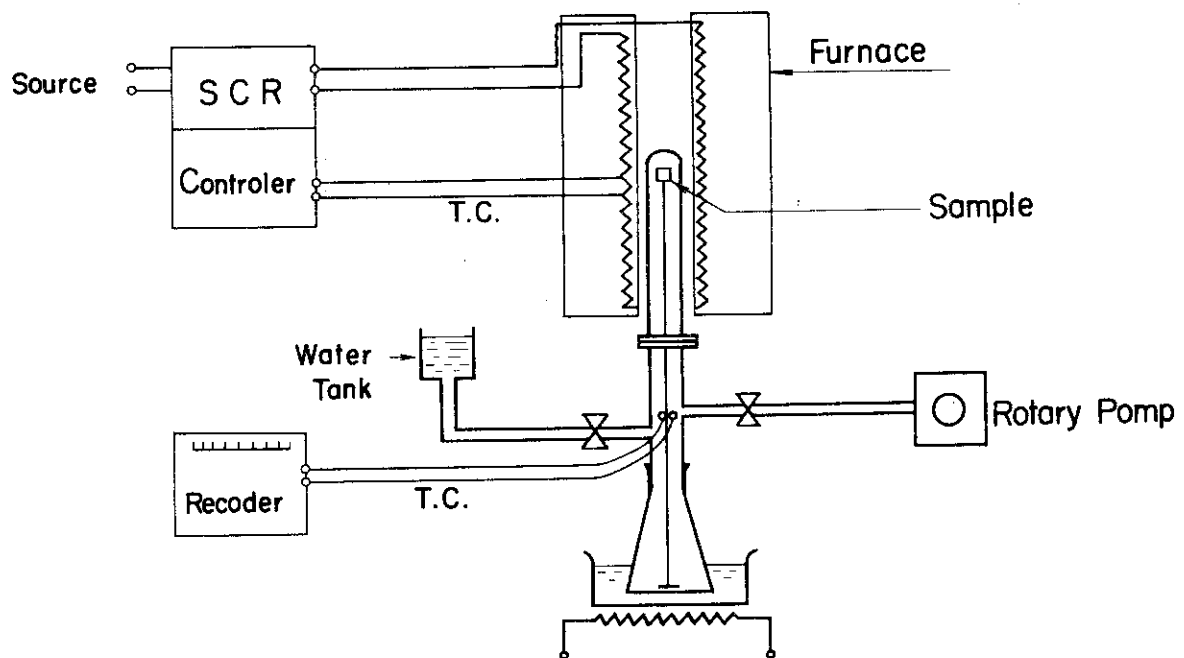


Fig.2-14 Apparatus for Zircaloy-Stagnant steam Reaction ¹⁷⁾

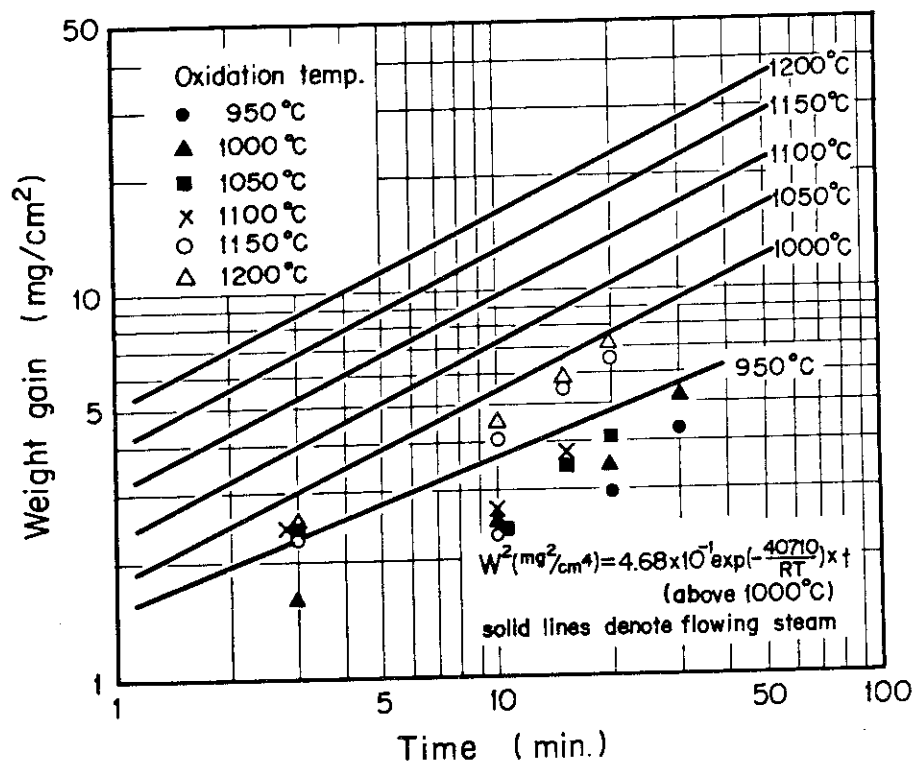


Fig.2-15 Stagnant steam oxidation of Zircaloy-4 as a function of holding time for various temperature ¹⁷⁾

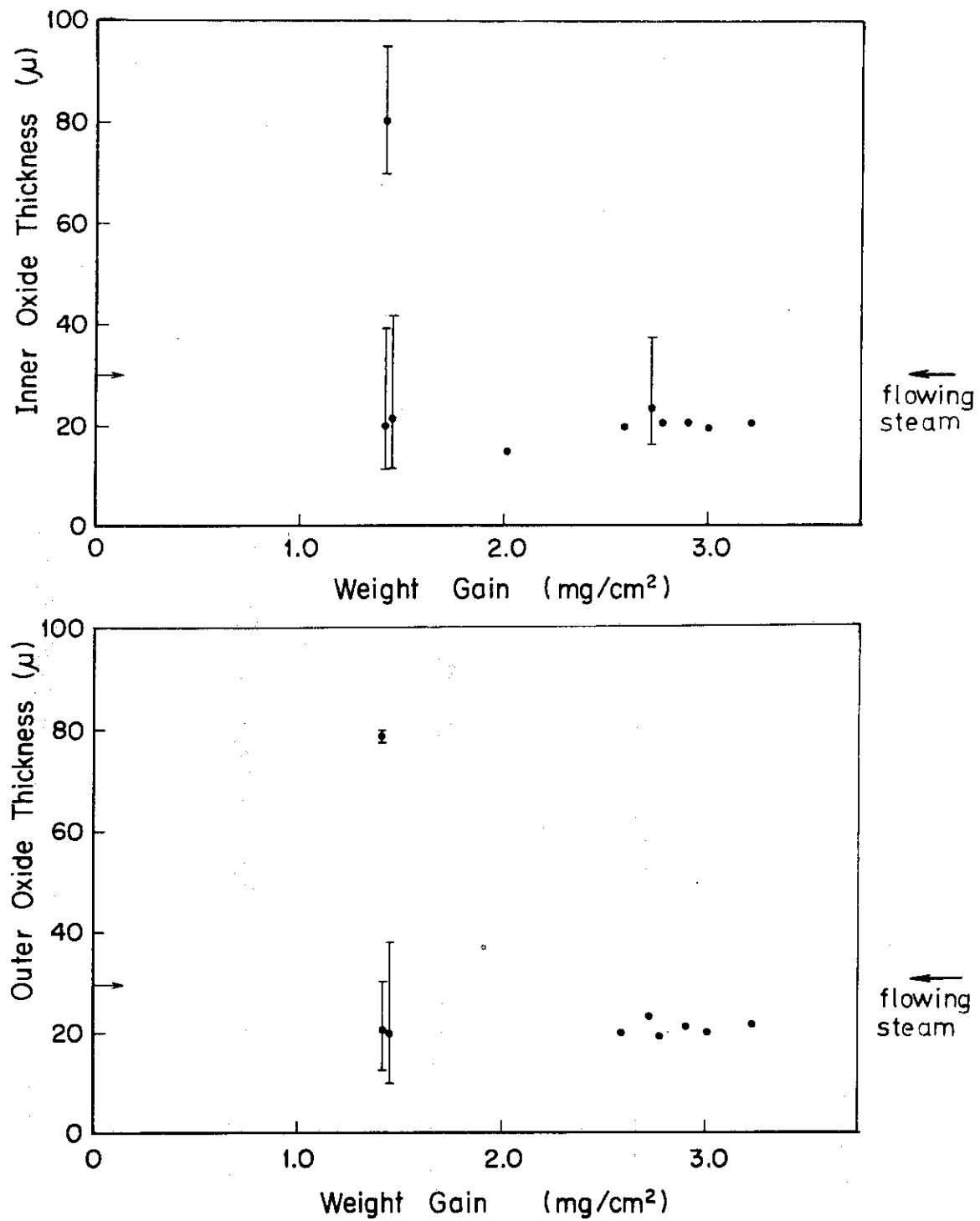


Fig.2-16 Oxide Thickness vs. Weight Gain in Stagnant Steam Oxidation at 1000°C for 10 min¹⁷⁾

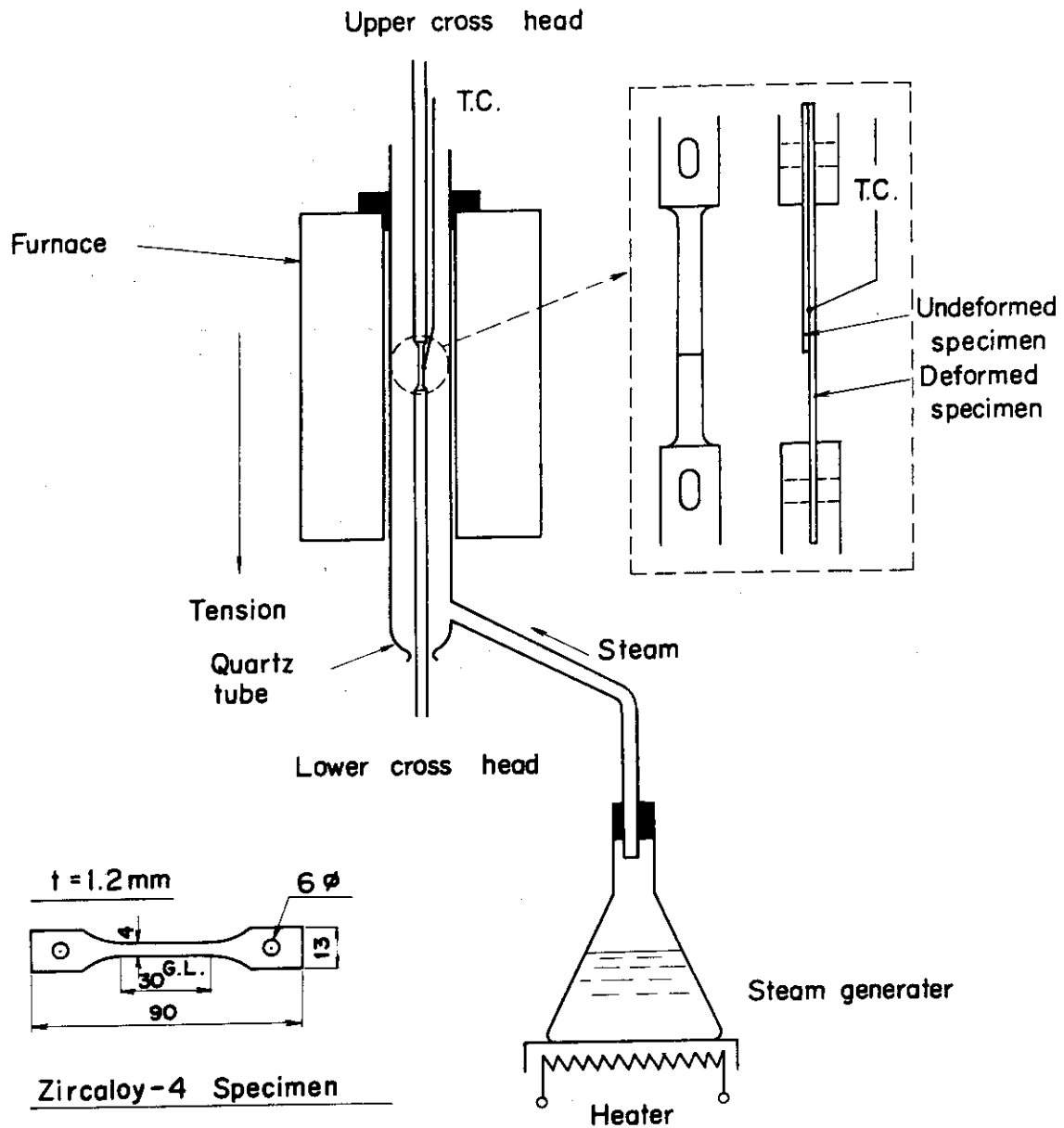


Fig. 2-17 Illustrated figure of the apparatus for the study of¹⁸⁾
deformation effect on zirconium-steam reaction

JAERI-FRL-III-403

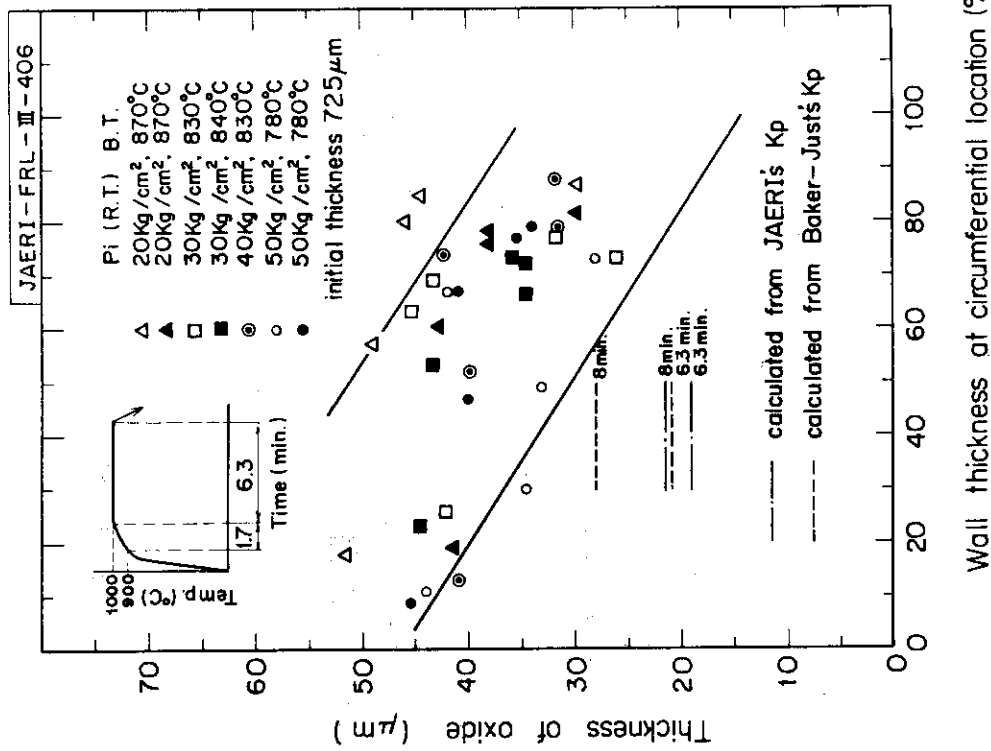


Fig. 2-19 Variation of oxide thickness with wall thickness at circumferential location of ruptured sham fuel rod in oxidation during a 6.3 min. exposure to steam at $1000^{\circ}\text{C}^{(18)}$

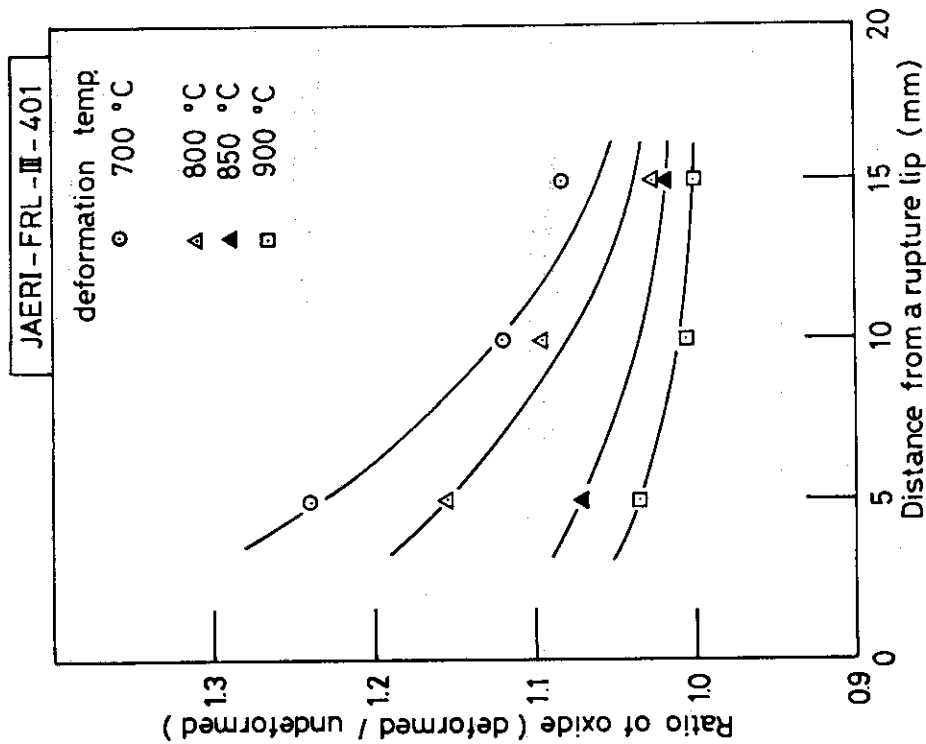


Fig. 2-18 Variation of oxide thickness with a deformation temperature for Zircaloy-4 cladding in oxidation during a 5 min. exposure to steam at $1000^{\circ}\text{C}^{(18)}$

2.4 ORNLに於けるジルカロイ-水蒸気反応研究

ジルカロイ-水蒸気反応の研究は古くは50年代後半から行われてきており、70年代初期にはかなり多くのデータが蓄積されていた(文献36, 37参照)。その後、冷却材喪失事故が重要な問題として注目されるようになってから、各国の研究機関で精力的に研究が進められ、データの信頼度の向上が図られている。主な文献をTable 2-2にまとめてみた。特に米国ではORNLが精力的に取り組んでいる。彼等は水蒸気反応試験のみならず、酸素の拡散と言う基礎的な問題迄取り扱っており、彼等の仕事を調べることは有益であると思われる。本節では、ORNLがこの分野について行った研究を紹介する。

1. 温度制御精度

拡散や酸化反応は温度に対して非常に敏感なので特に温度測定や制御精度の向上に力を入れている。詳細は省略するが温度制御精度は、拡散実験では900℃で±1℃、1500℃で±2℃、酸化実験では900℃で±4℃、1500℃で±6℃程度であろう。

2. β -ジルカロイ中の酸素の拡散速度の測定

実験方法としてchemical diffusionとtracer diffusionとを用いており、測定範囲は前者が900~1500℃、後者が1160~1450℃でいずれも50℃間隔であった。熱処理後の濃度分布は ^{18}O radioactivation, Auger Electron Spectroscopy 及び boundary movement measurementなど3種類の 방법으로測定しており、結果は±5%の精度で一致していた。また、chemical diffusionとtracer diffusionとはそれぞれに長所が認められるが、今回の実験では双方ともよく一致する結果を出しており、両者を合せて統計処理をして整理している。

Fig. 2-20にORNLの測定結果(—— Current Study)を示す。ここで1000℃以下では α -層が混在している可能性があるので除いた。図には比較のためにMallet, Debuigne および Schmidt の求めた値もプロットしている。酸素の拡散速度は次式のようにアレニウス型に表わされる。

$$D = 2.48 \times 10^{-2} \exp(-28200/RT) \text{ cm}^2/\text{s} \quad \dots\dots\dots ^{18}\text{O} \quad (1-1)$$

$$\text{及び } D = 2.63 \times 10^{-2} \exp(-28200/RT) \text{ cm}^2/\text{s} \quad \dots\dots\dots ^{16}\text{O} \quad (1-2)$$

(1)式の信頼度は1000℃で±10%、1250℃で±4%、1500℃で±8%である。

3. 酸化反応速度-等温酸化

900℃から1500℃の温度範囲での水蒸気流中の酸化反応速度を50℃間隔で測定している。酸化実験装置としてはMaxi-ZWOKおよびMini-ZWOKと呼ばれる2種の装置を製作している。Maxi-ZWOKは別名high thermal inertia systemとも呼ばれていて、最高1000℃までの実験が可能で、かなり速い水蒸気流中(最高22m/sec)で実験できる。この装置は試験片温度ではなく水蒸気温度を制御しているので、1000℃以上では試験片の酸化による反応熱のため、試料温度がオーバーシュートすることがあるため、1000℃以上では制御精度が悪くなる。Mini-ZWOKでは直接試験片温度を制御するので制御精度が非常によい上に、最高100℃/sec以上の昇温速度も容易である。水蒸気圧力の酸化反応に及ぼす影響を調べるために3台目の試験装置が現在建設中である。

反応の測定方法はすべて ZrO_2 層の厚さを測定して求めている。酸化層の増加速度は、
 1000℃から1500℃でのみ放物線則で記述できる。ただ α 層の増加速度は1000℃
 以下でも放物線則にのっている。実験から得られた反応速度定数と温度との関係を以下に示す。
 なお酸化物層を ϕ , α 層を α ; X_i (酸化物 + α 層) を ξ , 酸素吸収量を τ で表わしている。

反応速度定数は、次式のようにアレニウス型で表わされる。

$$\delta \phi^2 / 2 = 0.01126 \exp \{ -35890 / RT \} \quad \text{cm}^2 / \text{s} \quad 1000 \sim 1500^\circ\text{C} \quad \text{酸化物層} \quad (2-1)$$

$$\delta \alpha^2 / 2 = 0.7615 \exp \{ -48140 / RT \} \quad \text{cm}^2 / \text{s} \quad 900 \sim 1500^\circ\text{C} \quad \alpha \text{ 層} \quad (2-2)$$

$$\delta \xi^2 / 2 = 0.3412 \exp \{ -41700 / RT \} \quad \text{cm}^2 / \text{s} \quad 1000 \sim 1500^\circ\text{C} \quad X_i \text{ 層 (酸化物} \\ + \alpha \text{ 層)} \quad (2-3)$$

$$\delta \tau^2 / 2 = 0.1811 \exp \{ -39940 / RT \} \quad \text{g} / \text{cm}^2 \quad 1000 \sim 1500^\circ\text{C} \quad \text{酸素吸収量} \quad (2-4)$$

酸素吸収量は酸化膜の厚さから Pawel の計算 (文献 3, 4) に従って拡散計算を行って算出した値である。

(2) 式の信頼度は 1000℃で±5%, 1250℃で±2.5%, 1500℃で±2%である。

Table 2-2 Published reports list concerning to zircaloy-steam reaction

No.	著 者	文 献 名	報告年	備 考
10	D.O. Hobson et al.	ORNL-4758	'72	ORNL, 酸化と脆化
39	D.O. Hobson et al.	Proc. ANS-Meeting on Water Reactor Safety Salt Lake City, Utah, USA., Conf. 730304, 274-287	'73	ORNL, 酸化と脆化
40	R.E. Pawel et al.	J. of Nucl. Mat. 49, 281,	'74	ORNL, 酸素の拡散解析
41	R.E. Pawel et al.	J. of Nucl. Mat. 50, 247,	'74	ORNL, 酸素の拡散解析
42	J.V. Cathcart et al.	ORNL-TM-4655	'74	ORNL に於けるジルカロイ-水反応 に関する研究の総合報告
43		ORNL-TM-4729	'74	1) 内容 ① 酸化反応 ② β 層中の酸素の拡散 ③ 温度及び酸素濃度分布の計 算コードの開発 2) 文献 13, 14 に主要な結果を 整理。 (本文参照)
44		ORNL-TM-4805	'75	
45		ORNL-TM-4914	'75	
46		ORNL-TM-5021	'75	
47		ORNL-TM-5148	'75	
48		ORNL-TM-5248	'76	
49		ORNL-5102	'76	
50		"Status of Zircaloy deformation and Oxidation Research at Oak Ridge National Laboratory" CSNI Specialist Meeting in Spand, Nord-Torpa	'76	
51		"Summary of the Zirconium Metal Water Oxidation Kinetics Program" CSNI Specialist Meeting in Spand, Nord-Torpa	'76	
52	R.A. Perkins	ORNL-NUREG/TM-19	'76	ORNL, 酸素拡散データ
53	I.E. Pawel et al.	"The diffusion of Oxygen in Beta-Zircaloy and the High Temperature Zircaloy-Steam Reaction" ASTM Specialist Meeting	'76	ORNL, 酸化と拡散

No.	著 者	文 献 名	報告年	備 考
-	-	-	-	-
54	S. Leistikov et al.	KFK-2050	'74	KFK, 酸化
55	S. Leistikov et al.	KFK-2130	'74	KFK, 酸化
29	S. Leistikov et al.	KFK-2195	'75	KFK, 酸化
56	S. Leistikov et al.	KFK-2262	'76	KFK, 酸化
57	S. Leistikov et al.	"Comparative Studies of Zircaloy 4/High Temperature Steam Oxidation under Isothermal and Temperature Transient" CSNI Specialist Meeting	'76	KFK, 酸化
-	-	-	-	-
22	B. Lustman	WAPD-SC-543	'57	酸化
23	A.W. Lemmon	BMI-1154	'57	同上
7	L. Baker, L.C. Just	ANL-6548	'62	同上
58	F.J. White	GEMP-475A	'67	同上
59	D.H.H. Clepfer	APED-5454	'68	同上
60	G.J. Scatena	NEDO-10674	'72	同上
28	M.J. Bentley et al.	BNES Conference on Nuclear Fuel Performance	'73	同上
61	V. Urbanic	J. of Nucl. Mat. 59, 90	'76	同上
35	R.G. Ballinger et al.	J. of Nucl. Mat. 62, 213	'76	同上
19	D.H. Brudhurst	J. of Nucl. Mat. 55, 311	'75	酸化と脆化
63	M.W. Mallet et al.	J. of Electrochem. Soc. 106, 181	'59	酸素拡散データ
64	J. Debuigne et al.	Metaux, Corrosion, Industries 501, 186	'67	同上
65	F.A. Schmidt et al.	Met. Trans. 1, 1371	'70	同上
66	M.O. Tucker et al.	"Partitioning of Oxygen in Steam Oxidised Zircaloy" CSNI Specialist Meeting	'76	酸素の拡散解析

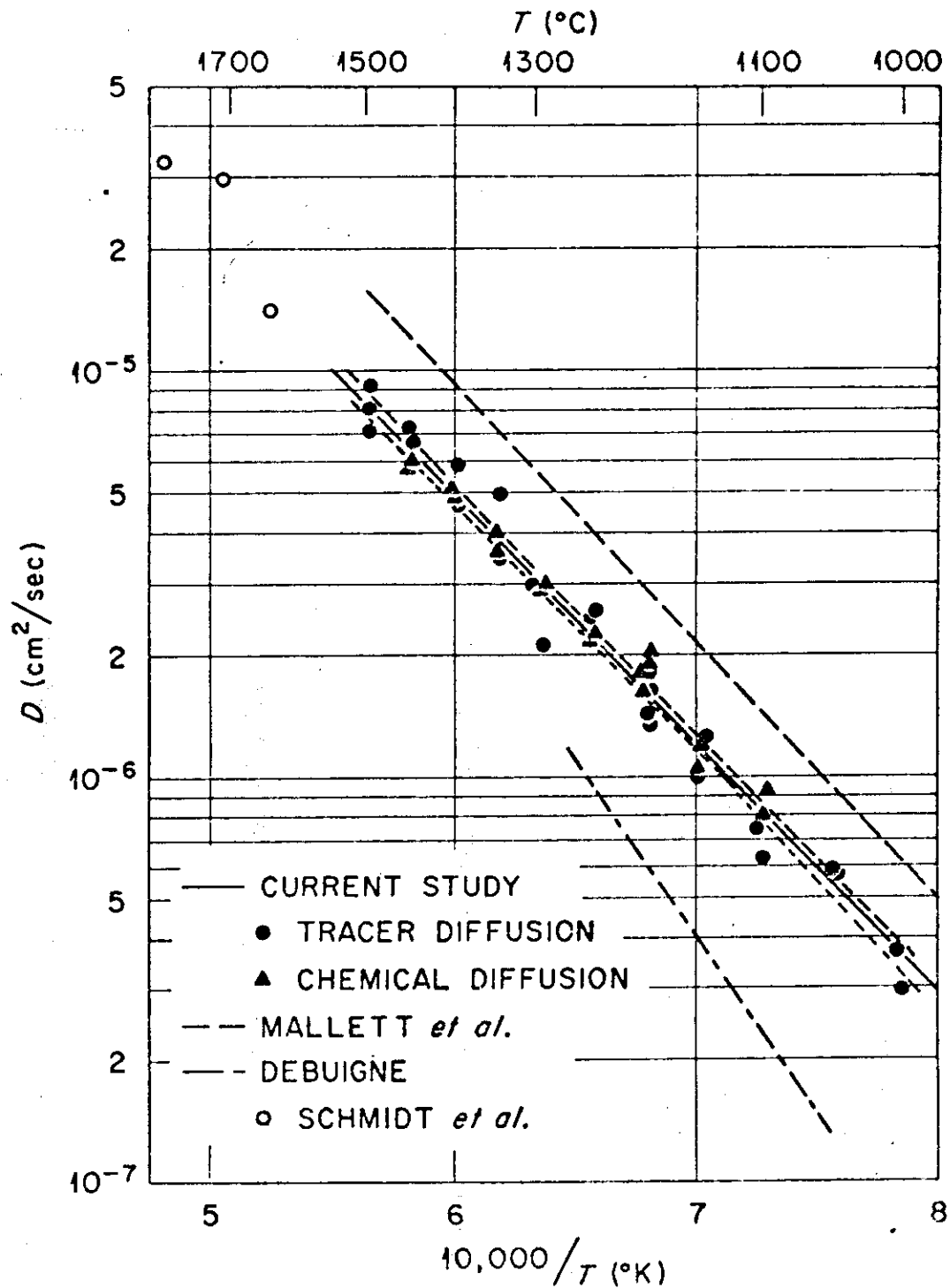
No.	著 者	文 献 名	報告年	備 考
-	-	-	-	
23	C.J. Rosa	J. Less Common Metals 16, 173	'68	酸化レビュ-
67	D.J. Douglas	Atomic Energy Review, Suppl., 389	'71	同上

ASTM Specialist's Meeting ----- the ASTM Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry,

in

Quebec City, Canada, Aug. 10-12, 1976

ORNL-DWG 76-8103

Fig. 2-20 Arrhenius plot for diffusivity of oxygen in β -zircaloy-4.

2.5 参 考 文 献

- (1) 本 間 功 三, 他 : 日本原子力学会昭和 49 年度燃料材料分科会 (1974)
- (2) 小 松 和 志, 他 : 未発表データ
- (3) 池田清一, 伊藤伍郎, 大橋重雄 : 日本金属学会誌, 39, 710 (1975)
- (4) 池 田 清 一, 他 : 未発表データ
- (5) 古 田 照 夫, 他 : JAERI-M-6601 (1976)
- (6) 鈴 木 元 衛 : JAERI-M-6879 (1977)
- (7) Baker, L., Just, L.C. : ANL-6548 (1962)
- (8) Cathcart, J.V. : ORNL/NUREG/TM-41 (1976)
- (9) Leistikow, S. : 私 信, KFK Semi-Annual Report に記載予定
- (10) Hobson, D.O., Rittenhouse, P.L. : ORNL-4758 (1972)
- (11) Cathcart, J.V. : ORNL/NUREG/TM-17 (1976)
- (12) Malang, S., Schanz, G. : CSNI Meeting, SNI 8/3 (1976)
- (13) 小 松 和 志 : 私 信
- (14) 鈴 木 元 衛 : JAERI-M-6538 (1976)
- (15) 古 田 照 夫, 他 : JAERI-M-6339 (1975)
- (16) 古 田 照 夫, 他 : 日本原子力学会昭和 51 年度燃料材料分科会 (1976)
- (17) 本 間 功 三, 他 : JAERI-M-6602 (1976)
- (18) 古 田 照 夫, 他 : JAERI-M-6869 (1977)
- (19) Bradhaust, D.H., Heuer P.M. : J. Nucl. Mater., 55, 311 (1975)
- (20) Baker, L. Jr. and Iuino, R.O.
Analyzing the effects of a Zirconium - Water Reaction
Nucleonics, 23 (1965) 70
- (21) Bostrom, W. A.
The High Temperature Oxidation of Zircaloy in H₂O
WAPD - 104, (1954)
- (22) Lustman, B.
Zirconium - Water Reaction Data and Application to PWR Loss-of-coolant Accident
WAPD - sc - 543, (1957)
- (23) Lemmon, A. W. Jr.
Studies Relating to the Relation between Zr and Water at high Temperature
BMI - 1154, (1957)
- (24) I'anni, P. W.
Metal - Water Reactions - Effects on Core Cooling and Containment
APED - 5454, (1968)

- (25) Hesson, J. C., Ivins, R. O. and Wilson, R. E.
Laboratory Simulations of Cladding - Steam Reactions following
Loss-of-Coolant Accidents in Water cooled Power Reactors
ANL - 7609, (1970) Ex - 161, Jan., (1970)
- (26) Lundy, T. S. and Pawel, R. E.
Oxidation Phenomena
Ex - 1123,
- (27) Brassfield, H. C., White, J. F., Sjodahl, L. and Bittel, J. F.
Recommended Property and Reaction Kinetics Data for Use in Evaluat-
ing a Light Water cooled Reactor Loss-of-Coolant Incident involv-
ing Zry - 4 or 304 SS Clad UO_2
GEMP - 482, April, (1968)
- (28) Bentley, M. J. and Mowat, J. A. S.
Oxidation of Zry - 2 under simulated LOCA Conditions and its
Effect on Room-temperature Ductility of SGHWR Cladding
British Nucl. Energy Soc. Conference, Oct., (1973), London, Paper
82
- (29) Leistikow, S., Berg, H. V., Jennert, D., Kraft, R. and Schanz, G.
Untersuchungen zur Uochtemperature - Wasserdampf - Oxidation von
Zircaloy - Hullrohren beim Kuhlmitteilverlustunfall
KFK - 2195, (1975)
- (30) Pemsler, J. P.
Studies on the Oxygen Gradients in Oxidizing Metals - III
Kinetics of the Oxidation of Zr at High Temperatures
J. Electrochem. Soc., 112 (1965) 477
- (31) Pemsler, J. P.
The Kinetics and Mechanism of Oxide Film Growth of Zirconium
Electrochemical Technology, Mar. - April (1966) 128
- (32) Wallwork, G. R. Smetzer, W. W. and Rosa, C. J.
The Parabolic oxidation Kinetics of Alpha - Zr at 850 C
Acta. Met., 12 (1964) 409
- (33) Rosa, C. J.
Oxidation of Zr - A Critical Review of Literature
J. Less - Common Metals, 16 (1968) 173
- (34) Baker, L. Jr., Warchal, R. L., Vogel, R. C. and Kilpatrick, M.
Studies of Metal - Water Reactions at High Temperatures
1. The Condenser Discharge Experiment : Preliminary Results with
Zr, ANL - 6257, (1961)

- (35) Ballinger, R. G., Dobson, W. C. and Biederman, R. R.
Oxidation Reaction Kinetics of Zircaloy - 4 in an unlimited
Steam Environment
J. Nucl. Mater., 62 (1976) 213
- (36) Urquhart, A. W. and Vermilyea, D. A.
A Preliminary Correlation between the accelerated Corrosion of Zry
in BWR and in High Temperature, High Pressure Steam
J. Nucl. Mater., 62 (1976) 111
- (37) Graber, M. J., Zelezny, W. F. and Schmunk, R. E.
A Metallurgical Evaluation of simulated BWR Emergency Core
Cooling Tests
IN - 1453, March (1971)
- (38) Kawasaki, S. Furuta, T. and Homma, K.
Inner Surface Oxidation of a Fuel Cladding for LWR under a LOCA
Specialist Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements
under Accident Conditions, Spatind, Norway, Sep. (1976)

3. ジルカロイ被覆管の変形挙動

3.1 破裂挙動

冷却水喪失事故時、燃料棒は熱除去の悪化に伴い、水蒸気中で温度上昇を生じる。この時、ジルカロイ被覆管は強度の低下と共に、燃料棒内の初期封入ガス（PWR）および核分裂生成ガスによる内圧によって、ふくれ挙動を示す。被覆管のふくれ挙動は燃料棒内圧、温度上昇速度等によって異なり、条件によっては被覆管の破裂に至る。これらのふくれおよび破裂挙動は燃料棒の持つ蓄積エネルギーと共に、LOCA時の被覆管の温度履歴を左右するだけでなく、炉心の冷却性能すなわち、緊急冷却水の流路閉塞に影響を与える。したがって、ジルカロイ被覆管の高温変形挙動はLOCA時の原子炉の安全性を確認する上で、重要な因子の一つであり、現在までその解明のための試験が各研究機関において実施されて来ている。そこで国内の各研究機関で実施された試験結果を共通の方法で整理し、また外国の代表的試験結果を補足して、ジルカロイ被覆管の変形挙動の検討を試みた。

1. 変形試験方法

被覆管の変形挙動を確認する試験では、通常LOCA時の燃料棒挙動を模擬するため、ジルカロイ被覆管内に燃料ペレットに代るアルミナ・ペレット等を挿入した模擬燃料棒を内部加圧した後、高周波、直接通電または抵抗炉等によって、一定の昇温速度で加熱し、その時の被覆管の変形および破裂挙動を確認する方法が実施されている。

被覆管の変形および破裂挙動はその寸法、初期内圧、昇温速度の試験条件の他、加熱方法、試験雰囲気、試験体支持方法等の試験方法に影響を受けるため、これらを明らかにしておかねばならない。そこで、国内の各研究機関で実施された試験の条件をTable 3-1に示す。

2. 被覆管破裂温度

燃料棒初期内圧に対する被覆管破裂温度をFig. 3-1に示す。PNC, JAERIおよびMAPIで実施された試験結果は $5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ 以下の遅い昇温速度と $40 \sim 50^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ の速い昇温速度条件下とに分類して整理している。破裂温度は試験方法の相異に関係なく、初期内圧約 $20\text{kg}/\text{cm}^2$ 以上においては、内圧の増加と共にほぼ直線的に低下している。また、それ以下の内圧範囲では、破裂温度は内圧の低下と共に急激に上昇する傾向が見られる。高周波加熱を用いて試験を実施したPNC, MAPI, Emery⁽¹⁾およびJAERIの結果を比較すると、前三者は初期内圧に対してほぼ同様な破裂温度分布を示しているのに対し、JAERIは若干低い温度領域で破裂を生じる結果を得ている。一方、反射式加熱炉を用いたHobson⁽²⁾、燃料棒内部ヒータ加熱を用いたChung⁽⁴⁾の試験結果は高周波加熱方式のそれと比べ、初期内圧に対する破裂温度は若干高い温度領域に分布している。

昇温速度の破裂温度に与える影響については、MAPIは約 $50\text{kg}/\text{cm}^2$ 以下の初期内圧範囲において、昇温速度の上昇と共に破裂温度が低下する傾向を観察したが、それ以上の内圧範囲では昇温速度の相異による破裂温度の差を明らかに確認することはできなかった。昇温速度の

上昇と共に破裂温度が若干低下する傾向は Emery⁽¹⁾の試験においても観察されている。一方、PNCの5℃/secおよび50℃/secの昇温速度条件下での試験によると、破裂温度は速い昇温速度の時、高くなる傾向が見られる。このような傾向はB. D. Clay⁽⁵⁾やChung⁽⁴⁾の試験においても認められている。

同一加熱方式を用い、またそれぞれの試験雰囲気が窒素ガス、水蒸気および真空と異なるPNC, MAPI, および Emery の試験結果によると、初期内圧に対する破裂温度はほぼ同じ温度領域に分布しており、破裂温度へ与える雰囲気の影響は小さいと思われる。Chung⁽⁴⁾は水蒸気および真空中における破裂温度の相異について、初期内圧に対する破裂温度は水蒸気中で若干高くなると報告している。しかし、その差は顕著なものではない。また、Chapman⁽³⁾は破裂温度はほぼ同じであり、相異は認められなかったと報告している。

JAERIは水蒸気中で500℃、5時間および400℃、100時間の酸化処理を施した被覆管の変形試験を実施した。その結果、表面が酸化された被覆管では、初期内圧に対する破裂温度は生管に比べ高くなる傾向があることを確認した。

3. 被覆管の破裂部ふくれ量

3.1 初期内圧と円周伸びの関係

初期内圧と円周伸びの関係について、JAERI, PNC, およびMAPIの国内での試験結果と共に、Hobson⁽²⁾, Emery⁽¹⁾およびKWU⁽⁶⁾の外国における代表的試験結果を併せてFig. 3-2に示す。

国内およびHobsonの試験結果では、円周伸びは昇温速度の大、小に依らず、約25～35 kg/cm²の初期内圧範囲（但し、Hobsonの試験結果では破裂圧力）で最も小さくなる傾向が見られる。一方、Emery およびKWUの試験では、その初期内圧範囲が約50～60 kg/cm²に存在している。約25 kg/cm²以下の内圧範囲においては、円周伸びは内圧の低下と共に増加する傾向があり、PNCの試験では円周伸びが昇温速度の大、小にあまり左右されないのに対して、Hobsonの試験では速い昇温速度条件下でより大きなふくれを示している。また、約35 kg/cm²以上の初期内圧条件下では、円周伸びは昇温速度に依存する傾向が認められ、MAPI試験では、約5℃/sec以下の遅い昇温速度条件においては、内圧の増加につれて円周伸びは増加し、約70 kg/cm²でその最大を示している。

これに対して、約40～50℃/secと速い昇温速度条件下では、内圧の増加につれても円周伸びはほとんど増加していない。同様な傾向がHobsonおよびKWUの速い昇温速度条件下の試験において認められる。一方、PNCの遅い昇温速度条件下での試験においては、約80～95 kg/cm²の初期内圧に対する円周伸びはMAPIおよびHobsonの試験結果とほぼ同様であるのに対して、約50℃/secの速い昇温速度条件下では、円周伸びは遅い昇温速度条件下と比べると若干減少しているものの、MAPI, KWUに比べてかなり大きな伸びを観察している。

3.2 破裂温度と円周伸びの関係

破裂温度と円周伸びの関係をFig. 3-3およびFig. 3-4に示す。

Fig. 3-3にはMAPI, PNC, Chung⁽⁴⁾およびHobson⁽²⁾の試験結果を試験条件に関して約5℃/secと約50℃/secの2種の昇温速度に大別して、破裂温度に対する円周伸びを示し

ている。

円周伸びはジルカロイの相変態温度領域 ($\alpha + \beta$) に相当する約 $800 \sim 1000^\circ\text{C}$ の範囲における破裂において、昇温速度に関係なく小さくなる傾向が見られる。例えば、PNC および MAPI は約 $800 \sim 900^\circ\text{C}$ 、また Hobson および Chung は約 $800 \sim 950^\circ\text{C}$ の破裂温度領域で円周伸びの最小値を観察している。

被覆管はジルカロイの相変態温度領域 ($\alpha + \beta$) より若干低い温度範囲での破裂において、大きなふくれを生じる傾向が見られる。MAPI は遅い昇温速度条件下での試験において、約 $700 \sim 800^\circ\text{C}$ の温度領域での破裂の時、大きな円周伸びを観察している。しかし、速い昇温速度条件下では同様な温度領域の破裂においても、円周伸びは極端に減少している。PNC は遅い昇温速度条件時に 750°C 近辺の破裂において、大きな円周伸びを観察している。また、速い昇温速度条件下でも、Chung と同様、この温度範囲でかなり大きな円周伸びを示している。しかし、遅い昇温速度条件下と比べ、円周伸び量は減少すると共に、大きな円周伸びを示す破裂温度領域に移行している。

初期内圧が約 20 kg/cm^2 以下では、被覆管は 1000°C 以上の高温で破裂を生じることが Fig. 3-1 で認められるが、この温度範囲での破裂における円周伸びに関しては、PNC は約 1100°C で、また Chung は約 1050 および約 1200°C での破裂において、円周伸びが著しく大きくなる様子を観察している。

水蒸気および真空雰囲気中で高周波および電気抵抗加熱により試験した JAERI の結果を Fig. 3-4 に示す。電気抵抗加熱炉を用いた水蒸気中における遅い昇温速度条件下での試験では、破裂温度に対する外径伸びは約 $750 \sim 850^\circ\text{C}$ の温度範囲で大きく、またジルカロイの ($\alpha + \beta$) 相温度領域に相当する約 $850 \sim 950^\circ\text{C}$ で小さくなる傾向を示している。一方、高周波加熱で実施された 29 および 47°C/sec と速い昇温速度条件下での破裂温度に対する外径伸びは、 $700 \sim 800^\circ\text{C}$ の温度領域においても $20 \sim 35\%$ であり、遅い昇温速度条件下での外径伸びに比べかなり小さくなっている。したがって、この温度領域における破裂に伴うふくれ量に対して、MAPI 試験結果と同様、昇温速度がかなり大きな影響を持つものと思われる。

被覆管のふくれ量に対する試験雰囲気の影響に関して、Fig. 3-4 において、真空中および水蒸気中での外径伸びの相異を見ることができる。すなわち、変形量は真空中に比べ水蒸気中において若干減少することが認められる。同様な傾向について、Chapman⁽³⁾ および Chung⁽⁴⁾ はそれぞれアルゴン中および真空中に比べて水蒸気中では変形量は減少することを報告している。

4. まとめ

各研究機関で実施された変形試験結果を整理すると、被覆管の破裂温度に関しては、

- (1) 初期内圧に対する破裂温度は、約 20 kg/cm^2 の内圧を境にして、それ以上では内圧の増加と共に直線的に低下するのに対して、それ以下では内圧の低下と共に急激に上昇する。
- (2) 破裂温度は試験条件および方法によって、かなり大きな温度範囲に分布するが、加熱方法の相異に関して、高周波加熱方式による試験は、他に比べて若干低い破裂温度を示している。

(3) 破裂温度に与える昇温速度の影響は確認されているものの、統一した傾向を見ることができない。すなわち、MAPI, JAERI, および Emery が昇温速度の増加と共に、破裂温度が若干減少する傾向にあるのに対して、PNC, Chung, Clay はその逆の傾向を示している。

(4) 破裂温度への試験雰囲気の影響はほとんど認められない。また、あらかじめ酸化された被覆管は生管に比べ若干高い温度で破裂すると思われる。

被覆管のふくれに関しては、

(1) ふくれ量は、約 $20 \sim 45 \text{ kg/cm}^2$ の初期内圧条件下の破裂において、小さくなる傾向がある。

(2) ふくれ量はジルカロイの相変態温度領域 ($\alpha + \beta$) に相当する $800 \sim 1000^\circ\text{C}$ の温度範囲での破裂において、昇温速度に関係なく、小さくなる傾向がある。

(3) ジルカロイの ($\alpha + \beta$) 相温度領域より若干低い温度範囲での破裂において、大きなふくれを生じる傾向が見られるが、その時のふくれ量は昇温速度によって左右されると思われる。

(4) 被覆管は約 20 kg/cm^2 以下の初期内圧の時、約 1000°C 以上で破裂を生じるが、この時の破裂温度に対するふくれは、 $1000 \sim 1100^\circ\text{C}$ の温度範囲でふくれ量のピークが存在すると思われる。

(5) ふくれ量は試験雰囲気の影響を受け、水蒸気中では不活性ガスおよび真空中に比べ小さなふくれ量を示す。

Table 3-1 Experimental Conditions for burst tests

	試 験 片					試 験 方 法					
	被 覆 管				プレナム 容 積 (cm^3)	試験片支持方法	加熱方法	雰 囲 気	温度測定法	初期内圧 (kg/cm^2)	昇温速度 ($^{\circ}\text{C}/\text{sec}$)
	材 質	外 径 (mm)	肉 厚 (mm)	全 長 (mm)							
36) 37) JAERI	Zry-4	1075	0.725	222	140	一端 固定 一端 自由 両端 自由	・ 高周波 ・ 抵抗炉	水蒸気 ($1\text{kg}/\text{cm}^2$) 真空	熱電対 (接 触) 光高温計	10~50	3~47
41) 42) PNC	Zry-2	1646 1472 970	0.80 0.76 0.54	420 420 420	20 12 6	一端 固定 一端 自由	・ 高周波	窒素 ($1\text{kg}/\text{cm}^2$)	熱電対 (溶 接) 赤外線温度計	5~70	~50
35) MAPI	Zry-4	1072	0.62	500	19	一端 固定 一端 自由	・ 高周波	ヘリウム 水蒸気 ($1\text{kg}/\text{cm}^2$)	熱電対 (溶 接) 赤外線温度計	20~105	2~50
NRIM	Zry-2	1252	0.86	500	7.76	両端 固定	・ 直接通電	水蒸気 ($1\text{kg}/\text{cm}^2$)	赤外線温度計	試験 実施 中	

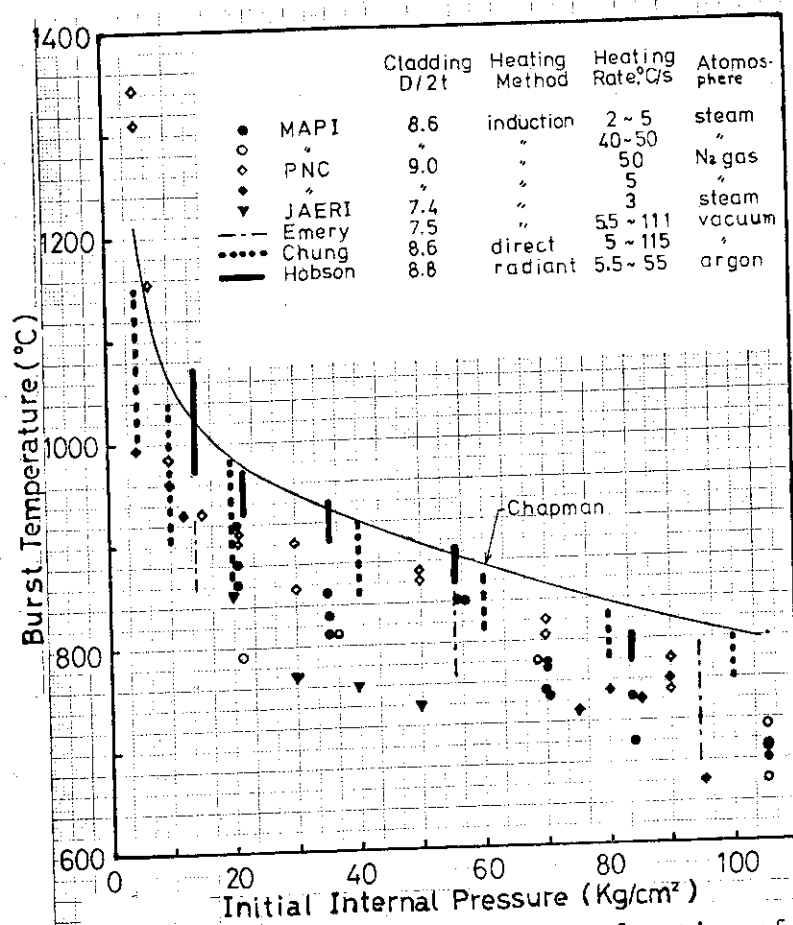


Fig. 3-1 Burst temperature as a function of initial internal pressure

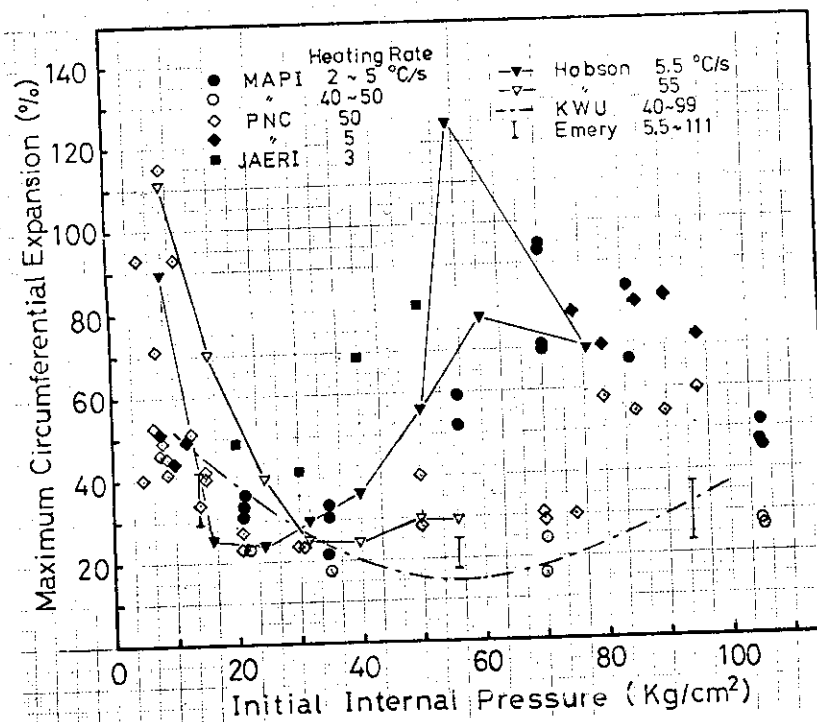


Fig. 3-2 Maximum circumferential expansion as a function of initial internal pressure

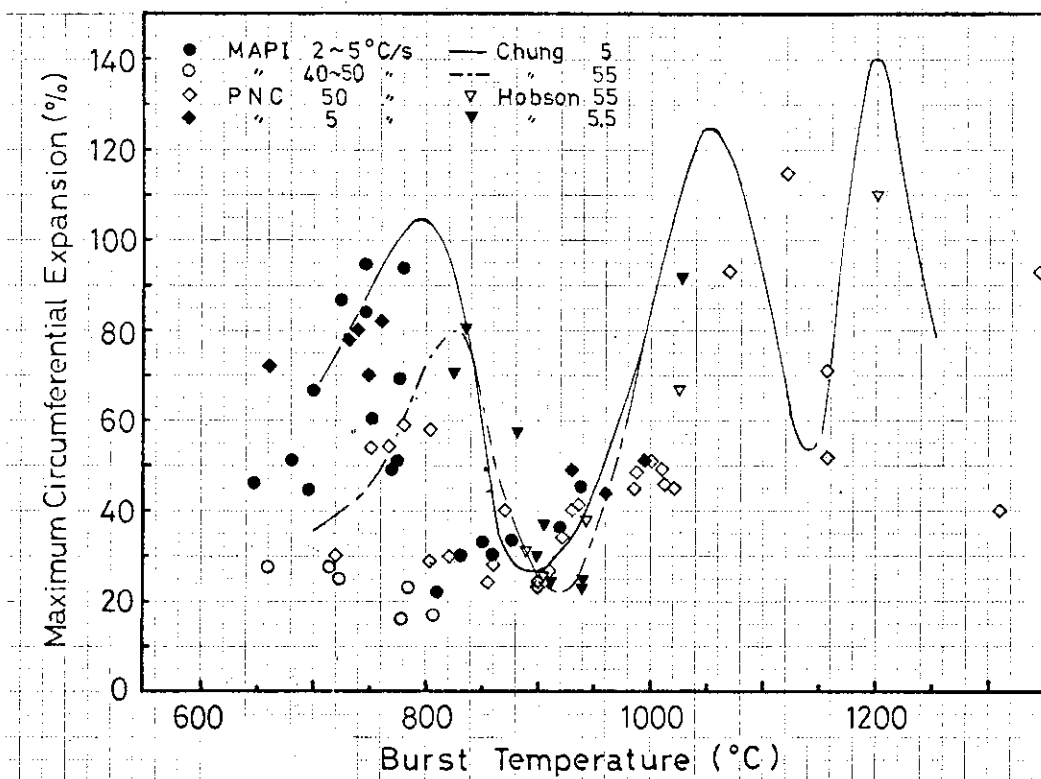


Fig. 3-3 Maximum circumferential expansion as a function of burst temperature

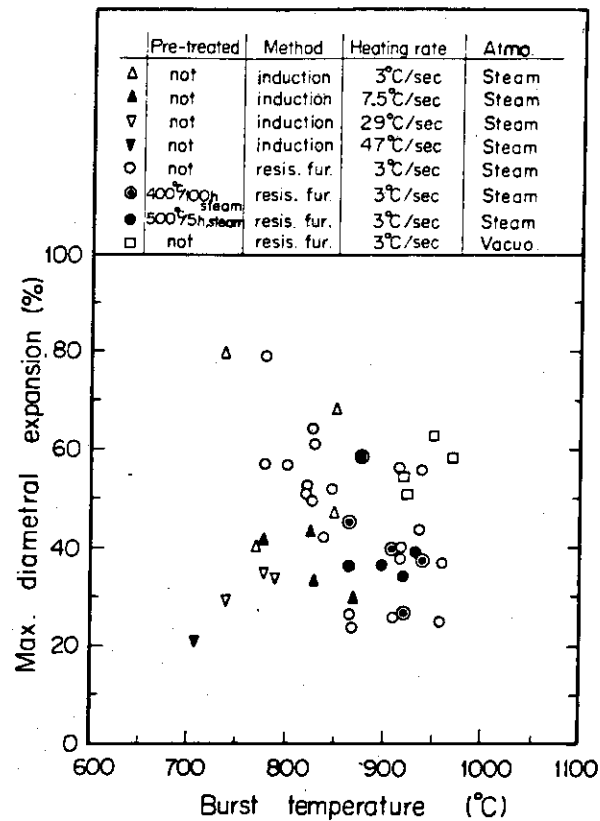


Fig. 3-4 Maximum diametral expansion vs. burst temperature for fuel rods

3.2 破裂までの変形過程

被覆管の破裂までの変形過程については、国内では未だその挙動を評価する実験は行われていない。しかし、LOCA 時の燃料被覆の温度履歴を決定する上において、ペレットと被覆管のギャップ・熱伝達を左右する被覆管の変形量は重要な因子の一つである。したがって、諸外国では高温での被覆管の変形過程を理論的に解明すると共に、実験によって確認しようとする試みが実施されている。

LOCA 時のように過渡温度条件下での被覆管の変形過程においては、変形開始から破裂までの時間が非常に短いために、その挙動を確認することが困難である。そこで、Hardy⁽⁷⁾ は CANDU-PHW 用ジルカロイ-4 燃料被覆管を、50~2000 psi の初期内圧条件下で直接通電方式により 0.5~100℃/sec で加熱し、破裂に至るまでの各温度から一度室温まで冷却後に外径変化を測定し、破裂までの変形過程を求めている。しかし、近年高速度撮影カメラを用いて破裂までの変形過程を連続して求める手法の実験が実施されており、より高い精度の評価が行われつつある。

B. D. Clay⁽⁵⁾ は内部加圧 (6.0~60 MN/mm²) したジルカロイ被覆管 (長さ 500 mm, 外径 10.3φ, 肉厚 0.7 mm) の破裂までの変形過程を写真撮影により求め、予測モデルとの比較を行った。変形量予測モデルでは、外径変化をクリープ変形と熱膨張による外径変化の和として表わしている。破裂までの外径歪変化について、実験値と予測値の比較を Fig. 3-5 に示す。予測値は 1~2% の低歪領域で熱膨張による外径変化を考慮しない場合、実験値とかなりの誤差を生じる。一方、5% 以上の歪領域においては、実験値と良く一致している。また、変形および破裂がジルカロイの相領域、または 970℃ 以上の温度領域において生じる内圧および昇温速度条件下では、実験値と予測値が良く一致すると報告している。

このように、LOCA 時の過渡温度条件下における被覆管の外径変化を、クリープを主としたモデルによって予測しようとする試みは、K. Malen⁽⁸⁾ や P. M. Jones⁽⁹⁾ 等によっても行われ、実験結果とモデル予測とは良く一致することを報告している。

P. Morlze⁽¹⁰⁾ はジルカロイ-4 被覆管 (長さ 500 mm, 外径 9.5 mmφ, 肉厚 0.6 mm) を真空中において直接通電加熱し、被覆管の破裂に至るまでの外径変化を写真撮影によって測定した。ある温度での被覆管の変形量は加熱速度および被覆管に加わる応力によって決定することができることを確認し、種々の加熱速度および応力条件下での変形量を予測するマスター・カーブを導びいている。温度変化に伴う外径変化の過程を Fig. 3-6 に、またマスター・カーブを Fig. 3-7 に示す。マスター・カーブの横軸は温度 (T℃) と加熱速度 (V℃/sec) の関数である $T - T_a / \log V - \log V_a$ で表わされ、 T_a および V_a は被覆管の材質によって決定される定数であり、実験によって T_a および $\log V_a$ をそれぞれ 490, および (-4) と決定している。また、縦軸は被覆管に加わる円周方向応力で表わされており、これらの条件が決まると図中の外径変化量の等高線によって被覆管の外径変化量が予測される。

以上のように、過渡温度条件下での被覆管の破裂までの変形過程は次第に解明されつつあり、LOCA 時の燃料安全解析上必要な詳細な燃料挙動が明らかになりつつある。

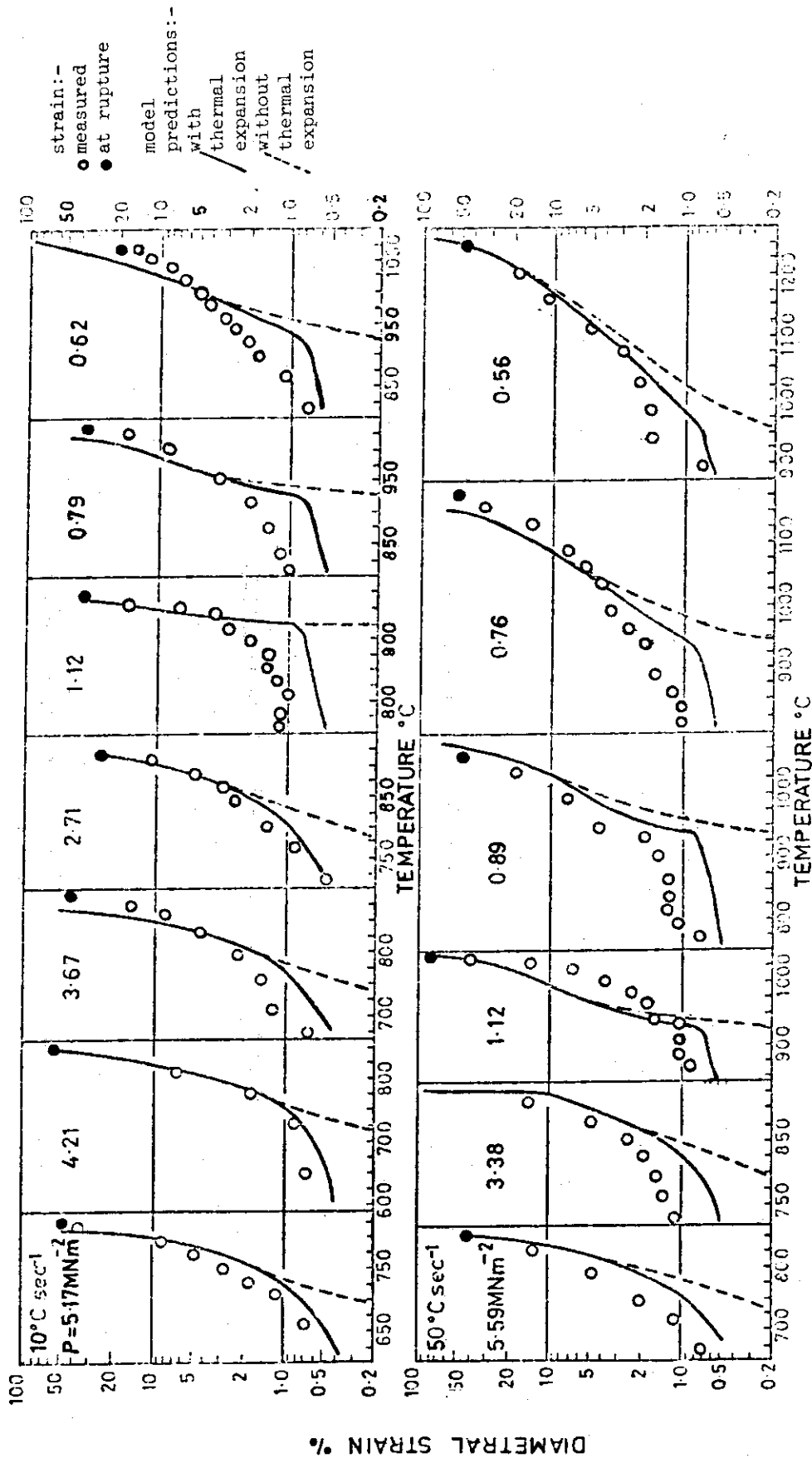


Fig. 3-5 Comparison of observed tube diametral strain with model predictions as a function of internal pressure for heating rates of 10 and 50 °C sec⁻¹

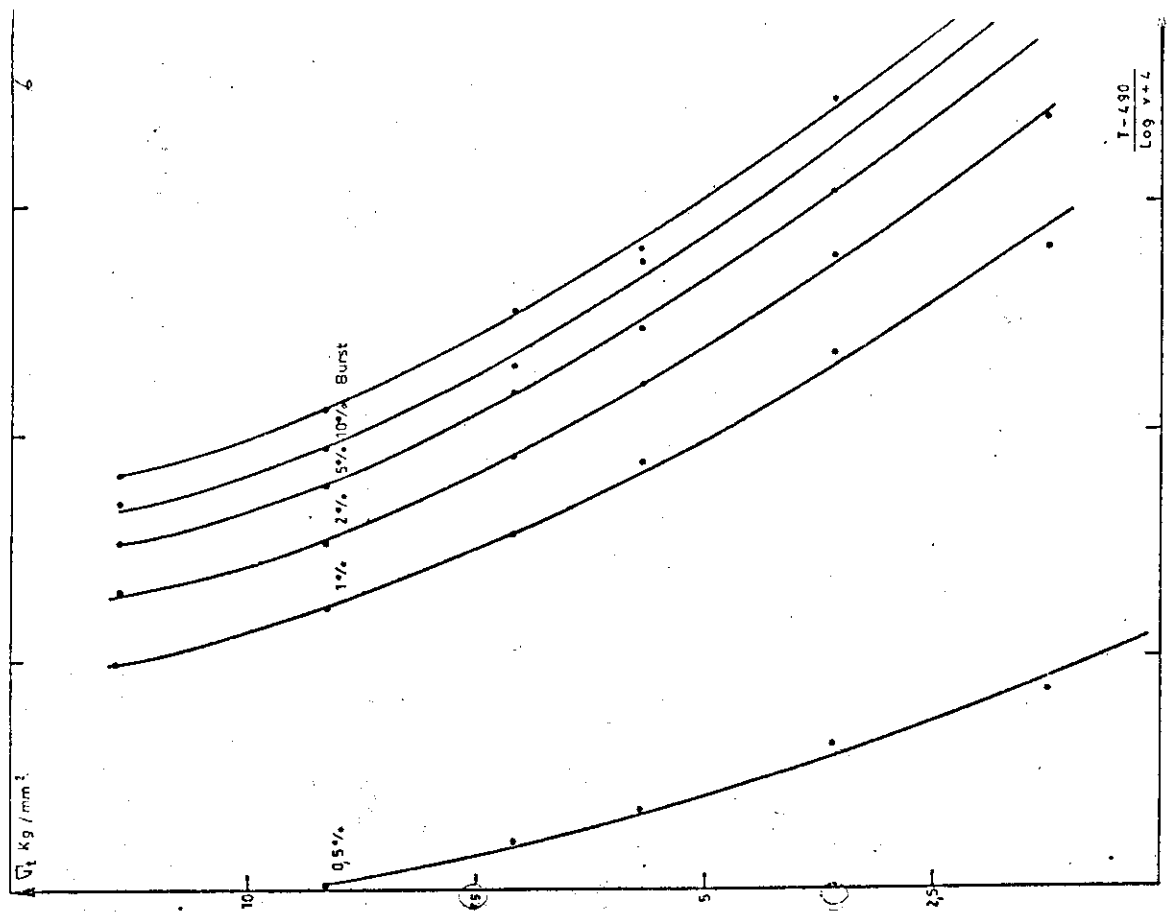


Fig. 3-7 Master deformation and burst curve¹⁰⁾

EDB : 42371 - 7 - 00

P. Morize

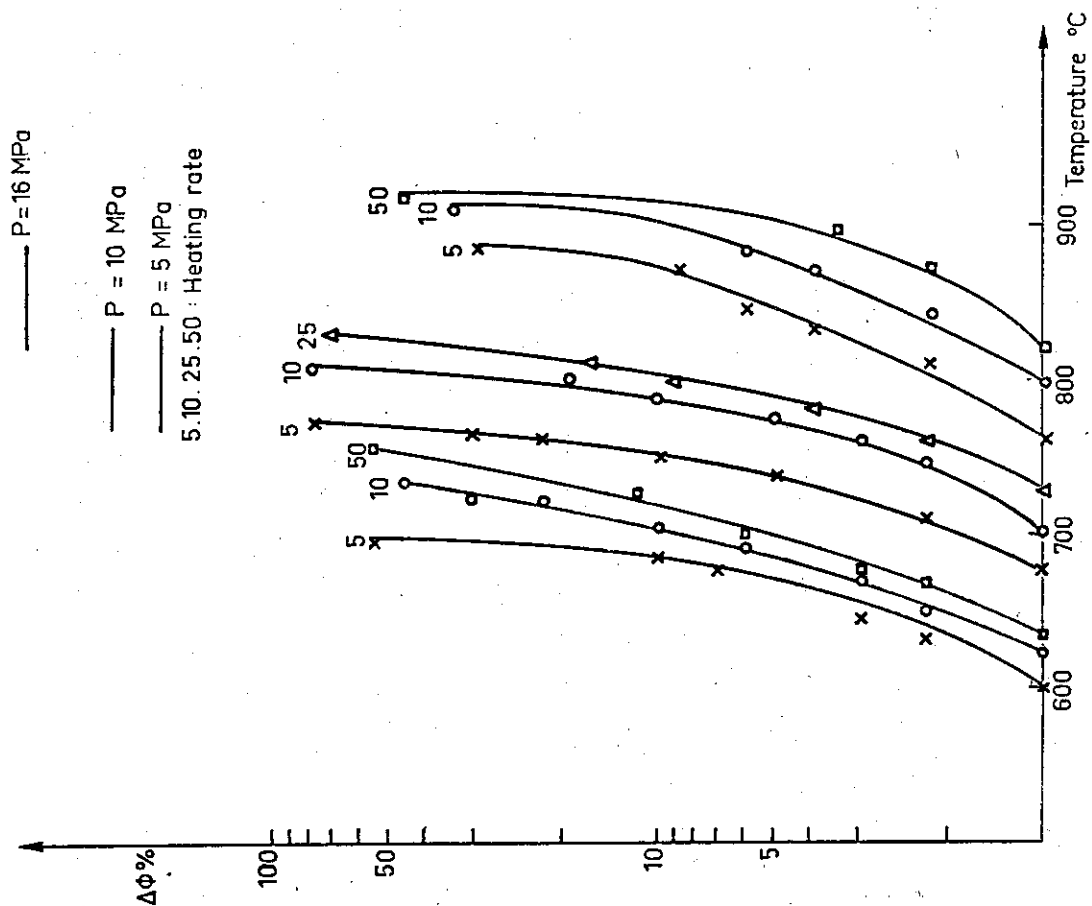


Fig. 3-6 Deformation of tubes with temperature
All results¹⁰⁾

EDB : 42353 - 7 - 00

3.3 高温変形の基礎的研究

LOCA 時の温度上昇にともなう、被覆管の膨れ、破裂が生じ、この被覆管の挙動が逆に温度上昇や緊急冷却水の流路に対して影響をおよぼす。したがって 3.1, 3.2 で被覆管の膨れと破裂を直接取り上げた研究について触れたが、LOCA 時における被覆管の高温変形挙動を詳細に推測し、LOCA 解析に利用するため基礎的な高温変形挙動の知見を得なければならぬ。ここでは、高温変形に対する基礎的な報告や高温変形挙動に影響を与える要因についての報告をまとめる。

1973年、Petersen⁽¹¹⁾が、それまでにおこなわれた高温変形に関する研究をまとめた。Table 3-2 はそのまとめの一部である。White⁽¹²⁾らは、ジルカロイ-4の板材をヘリウム中で引張試験した結果、650および950℃で0.5以上の歪に対し硬化が生じないこと、1200および1500℃で引張強さと降伏強さが等しくなることを認めた。LutonとJonas⁽¹³⁾は、Zr-0.7%Snをアルゴン中で775℃で歪速度 $10^{-4} \sim 1 \text{ s}^{-1}$ のもとで引張試験をおこない変形速度が減少するにつれて強さが低下するのを見出した。さらに、彼らは変形速度が小さければ硬化が起らないことを示した。Woods⁽¹⁴⁾により、600℃以上で冷間加工の効果は急速に消失することが確かめられた。Fig. 3-8にScott⁽¹⁵⁾、White⁽¹⁶⁾およびWoods⁽¹⁴⁾によって求められた温度による引張強さの変化を示す。Scottは、冷間加工された管を用いたが、他の焼鈍試料との対応が認められる。White⁽¹⁶⁾らは、変形速度のちがいによる引張強さの温度変化を調べFig. 3-9の結果を得た。図から、引張強さが変形速度に依存している様子がみられる。ジルカロイ-4の温度による伸びの変化がFig. 3-10に示される。伸びは400℃程度では温度にあまり依存しないが、400℃以上で温度とともに増加し、1200℃で85%と最高値を示す。変形速度が異なったときの伸びの温度変化はFig. 3-11に示され、結論として伸びは引張強さほど変形速度の影響を受けていない。

最近、精力的にこの分野の仕事を進めているKFKおよびANLの仕事について以下に詳しく述べる。

BočekとPetersen⁽¹⁷⁾は、ジルカロイ-4板状試料を用いて高温における展延性と歪速度依存性について調べている。Fig. 3-12に伸びの温度依存性を示す。Chung⁽¹⁸⁾らの真空中の値に比べ、BočekとPetersen⁽¹⁷⁾の大気中での伸びは β 相領域で酸化の影響を受けて小くなるが、伸びの最大は $(\alpha+\beta)$ 相領域に認められる。破断位置は歪と酸素含有量に依存している点も確かめられた。つぎに、860~1000℃での降伏応力と歪速度の関係はFig. 3-13のように典型的なS字型となり、超塑性挙動を示す。このとき、大気中では歪速度指数 m は歪とともに単調増加するが、予め酸化させた試料の真空中試験では歪速度指数 m が変化しない。

Fig. 3-14に、歪速度指数 m に対する結晶異方性の影響が与えられる。さらに、彼らは、大気および真空中における歪速度指数 m の違いや、酸素含有量による影響などを検討し、歪速度指数 m が酸素濃度の増加とともに逆に小さくなる事実も見出している。以上の結果から、彼らは大気中における高温変形をFig. 3-15にまとめている。

ANLでは、高温変形に対する組織、変態、歪速度、超塑性や加工硬化などの影響を取上げて検討を進めるとともに、酸化に伴う酸素濃度の変化を先の要因に考慮する非常に広範な研

究がおこなわれつゝある。こゝでは1976年3月までの各研究項目の概況を述べることにとどめる。(19-21)

組織の影響として、LOCA 条件で現われる等軸晶組織とマルテンサイト組織の場合を考慮し、各々の組織をもつ試料の機械的性質の温度変化 (Fig. 3-6)、歪速度指数 m などを調べ、マルテンサイト組織試料は等軸晶組織に比べ、引張強さの増加と歪速度指数 m の減少を見出している。また、圧延集合組織の歪速度指数 m におよぼす影響は室温から1200℃までの間で小さいことも確かめられた。一方、歪速度指数 m に対する酸素濃度の変化について Fig. 3-17 のような結果を得て、歪速度指数 m は全酸素含有量増加にともなって減少することを認めた。

超塑性は、 10^{-4} S^{-1} 以下の歪速度とジルコニウム-酸素状態図上で α 相境界の約50℃以上の二相領域で起ることが確認され、高温変形機構の解明が進められている。

加工硬化の解析は、圧延組織や金属組織の違いなどにもとずき、室温から1400℃まで克明に調べ、応力 σ と歪 ϵ の間に存在する $\sigma = \sigma_0 + k\epsilon^n$ なる式の定数 k 、 n を求めている。さらに酸素濃度 0.14~1.89w/o にわたり、加工硬化指数 n および定数 k も求められ、 β 単相のとき酸素濃度が増加すれば、 n および k は減少するが σ_0 は増加する傾向を見出している。したがって、酸素濃度が増加するとき、加工硬化率 $d\sigma/d\epsilon$ が減少する。一方、 α 単相の場合は、 β 単相と逆に加工硬化率 $d\sigma/d\epsilon$ が酸素濃度の増加につれ大きくなることも確かめられ、種々種々の酸素含有量については、酸化反応した試料についての加工硬化率の確定のために研究が続けられている。

ジルカロイ-酸素二元系の状態図を確立するため、組織学的方法および電気抵抗測定法によって変態を調べ、Fig. 3-18 に示す状態図を得ている。

以上、ANL での研究を概観したが、これらの研究が進むことによって高温変形の機構が明きらかになると思われ、さらに動的変形の観察結果と結びつけがおこなわれるなら、LOCA 時の燃料棒変形の推測も確かなものとなるであろう。

Table 3-2 Experimental Conditions for the Mechanical Tests

Author	Relationship	Temp. Range (°C)	Heat-Up Rate (°C/s)	Distortion Velocity	Test Sample	Preliminary Treatment	Test Atmosphere	Notes	
12)	$\sigma, \frac{\Delta \ell}{\ell_0}$	650-1500		0.05 min ⁻¹	Plate		Helium	Tensile Test	$\sigma_{0.2} \approx \sigma$ rupture, i.e. no hardening is to be expected at high temperatures
13)	$\sigma, \frac{\Delta \ell}{\ell_0}$	775		10 ⁻⁴ 1-s ⁻¹	Plate		Argon	Tensile Test Alloy	No hardening occurs at low distortion velocities
14)	σ_B, T	RT			Tube	78%kv+ 510°C/ 650°C	Air	Tensile Test	Up to 600°C affected by the cold work and heat treatment
16)	σ_B, T	RT-1800		0.06 min ⁻¹	Plate	Annealed	Inert	Tensile Test	Good matching of the values despite different prior treatment
15)	σ_B, T	RT-750			Plate	10%kv		Tensile Test	
16)	σ_B, T	600-1800		0.13 min ⁻¹	Plate		Inert	Tensile Test	Distortion velocity such that it affects the values of ultimate stress
12)	σ_B, T	600-1500		0.005 0.05 } min ⁻¹ 0.1	Plate		Inert	Tensile Test	
16)	ϵ_L, T	RT-1700			Plate	Samples in direction of rolling	Inert	Tensile Strength	Up to 300°C temperature does not affect expansion, max.
12)	ϵ_L, T	600-1500		0.005 0.05 } min ⁻¹ 0.1	Plate		Inert	Tensile Test	Expansion is not affected by distortion velocity Max. expansion at 1200°C

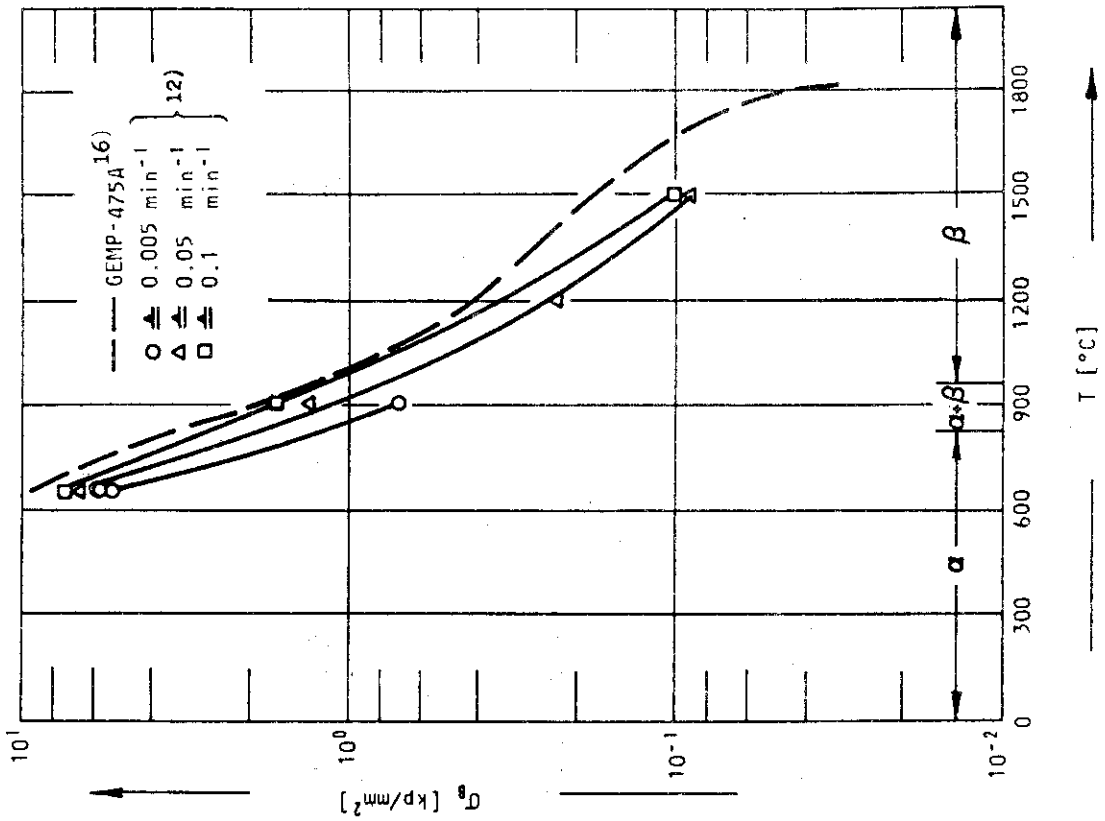


FIG. 3-9 ULTIMATE STRESS OF ZIRCALOY-4 PLATE IN A HELIUM ATMOSPHERE (12,16) IN RELATION TO THE DISTORTION RATE

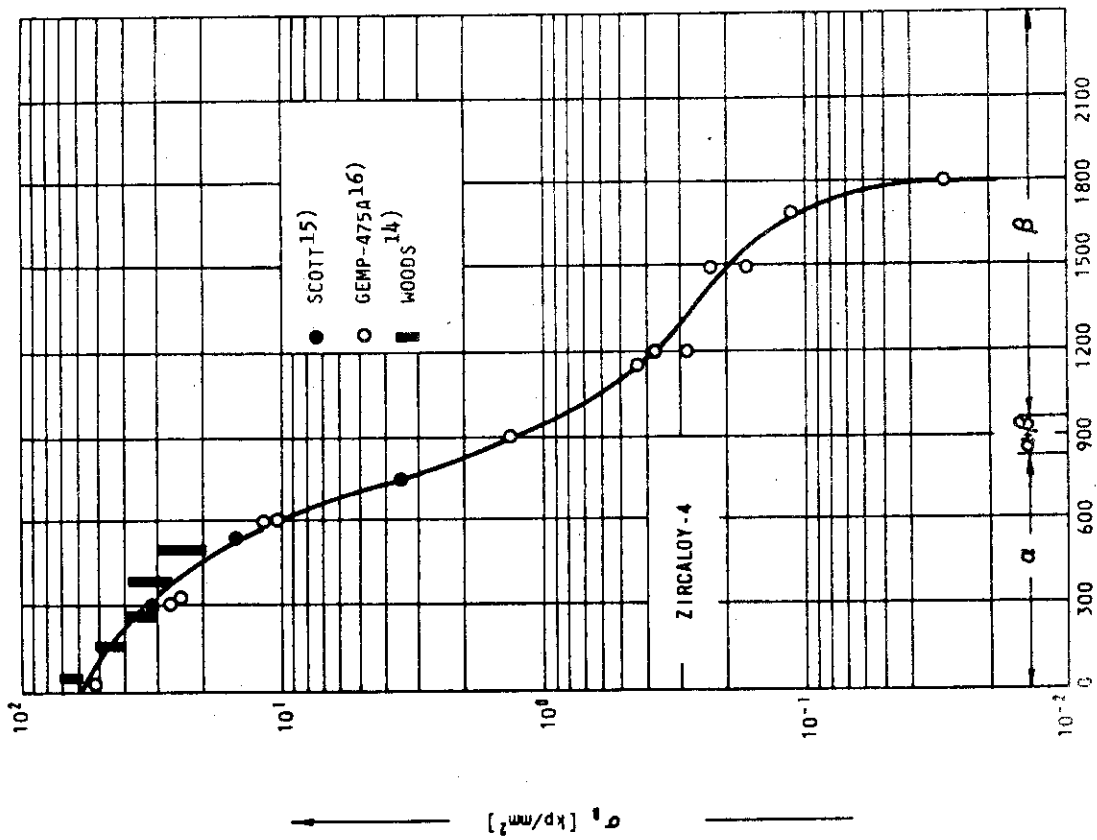


FIG. 3-10 ULTIMATE STRESS OF ZIRCALOY-4 IN RELATION TO TEMPERATURE UNDER ISO THERMAL CONDITIONS (14-16)

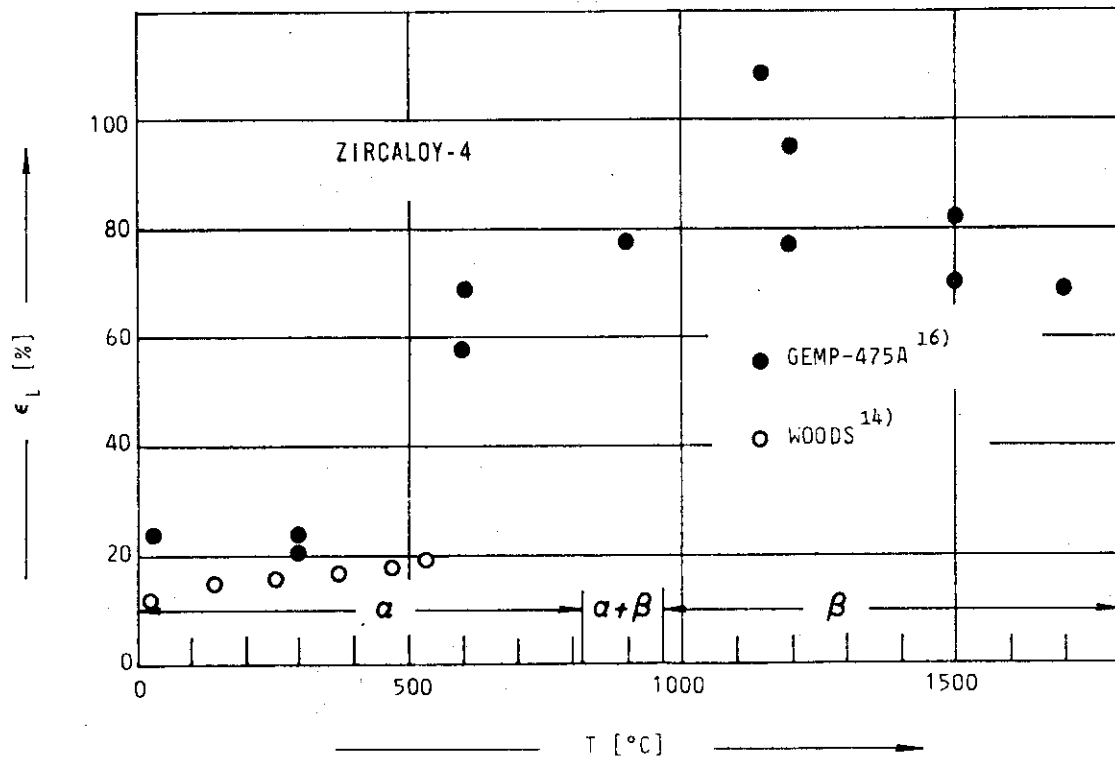


FIG.3-10 ELONGATION IN RELATION TO TEMPERATURE FOLLOWING TENSILE TESTS ON ZIRCALOY-4 PLATE IN AN ARGON ATMOSPHERE^{14, 16)}

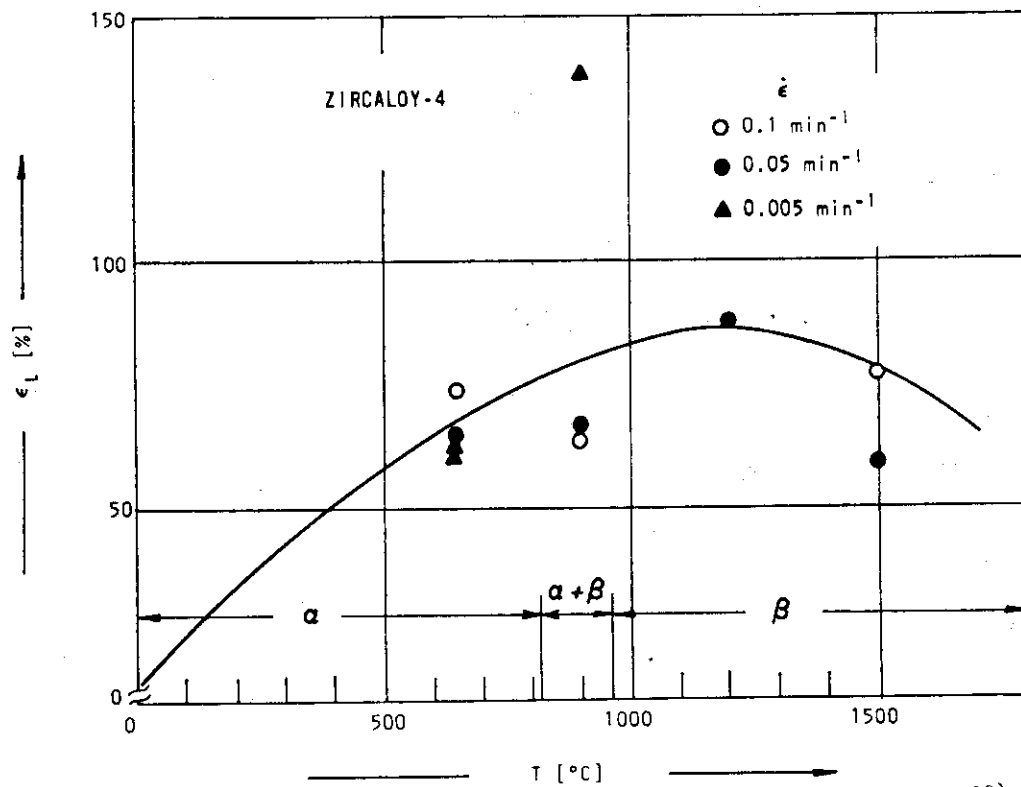


FIG.3-11 ELONGATION IN RELATION TO TEMPERATURE FOLLOWING TENSILE TESTS IN AN ARGON ATMOSPHERE AT DIFFERENT DISTORTION VELOCITIES¹²⁾

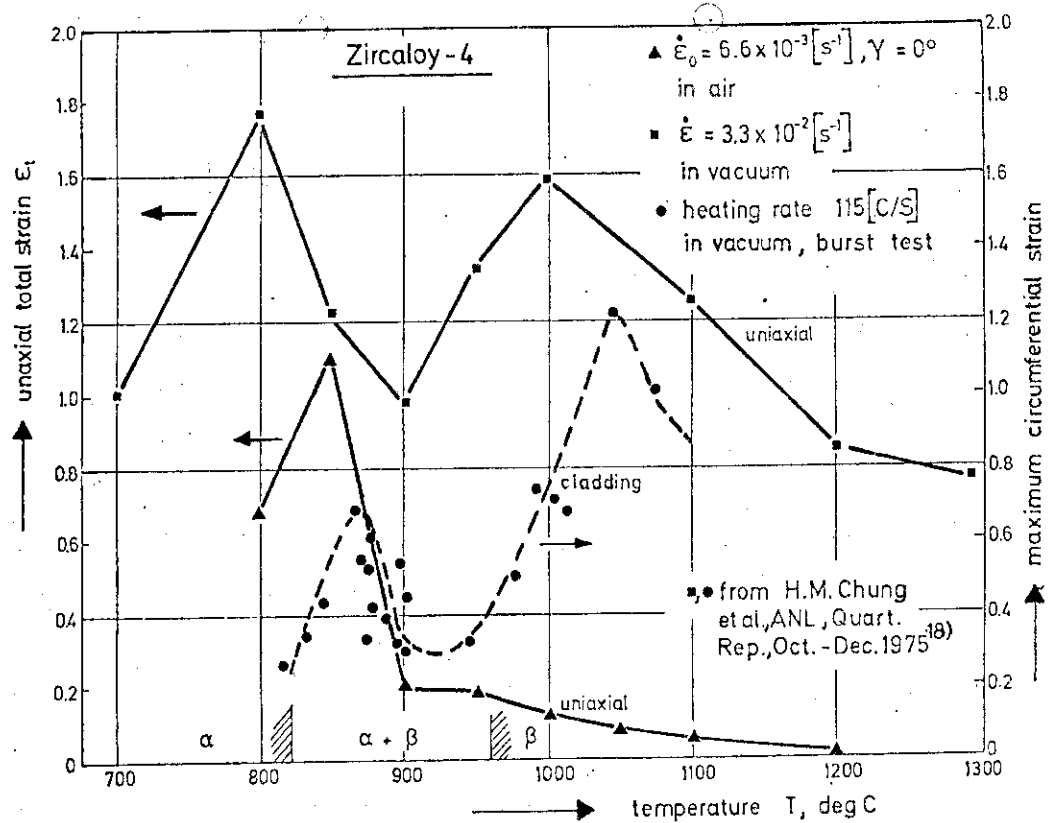


Fig. 3-12 Maximum circumferential strain for as received Zry-4 cladding and uniaxial strain to rupture vers. strain resp. (Comparison between results obtained by CHUNG et al. (18) and those obtained by the authors).⁽¹⁷⁾

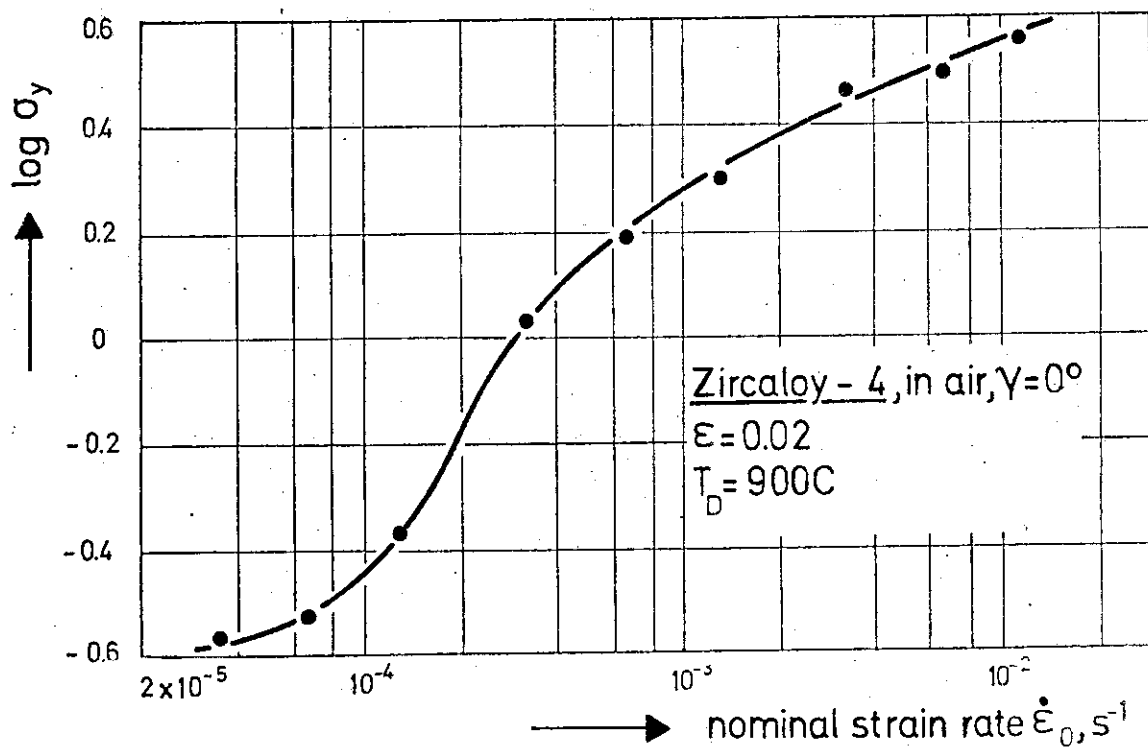


Fig. 3-13 $\log \sigma_y$ vs. $\log \dot{\epsilon}_0$ -plots for different temperatures.⁽¹⁷⁾

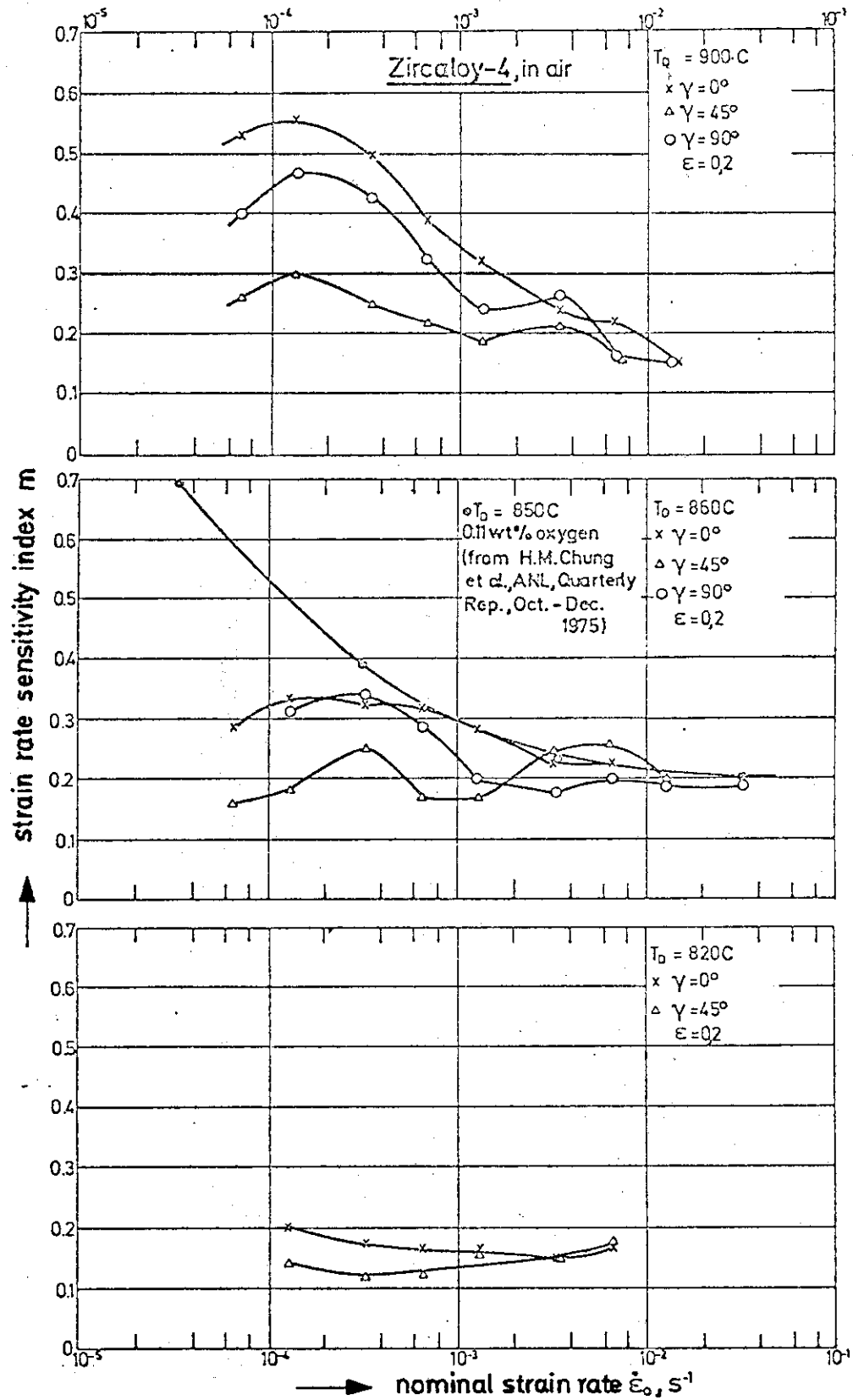


Fig. 3-14 The strain rate dependence of m for specimens with different orientation.¹⁷⁾

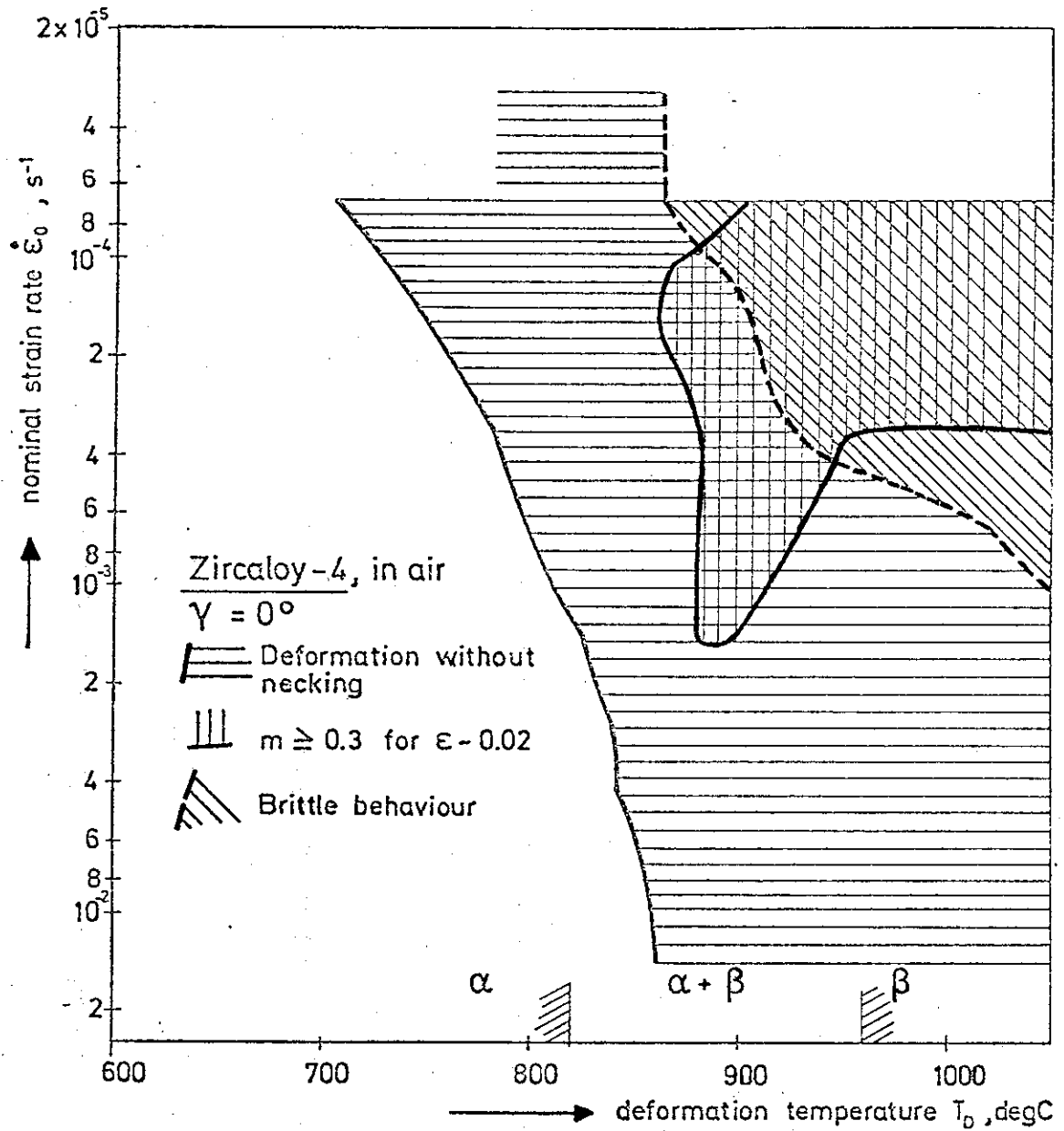


Fig. 3-15 On the necking behavior (air atmosphere).¹⁷⁾

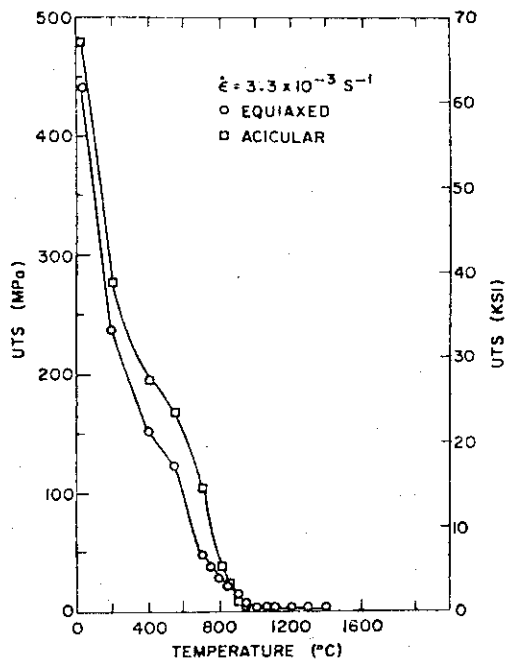


Fig. 3-16 Temperature Dependence of the UTS of Zircaloy-4 with Equiaxed and Basket-weave (Cooling rate = 180°C/min) Microstructures.
Neg. No. MSD-62586.²¹⁾

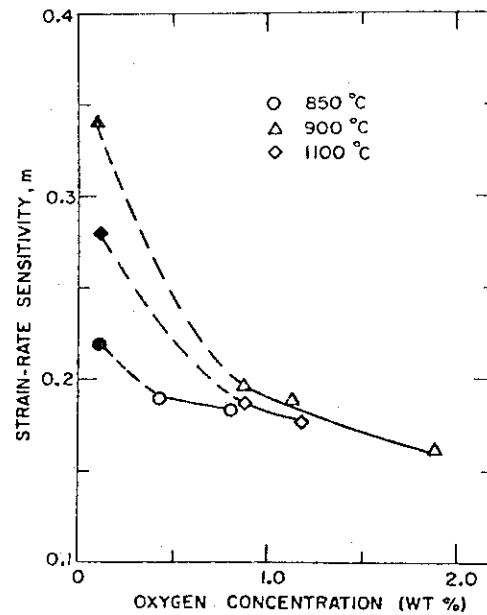


Fig. 3-17 Strain-rate Sensitivity of Zircaloy-4/Oxide Composites as a Function of Total Oxygen Concentration at 850, 900, and 1100°C . Strain-rate change from 3.3×10^{-4} to $3.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. $\epsilon = 0.02$.
Neg. No. MSD-62584.²¹⁾

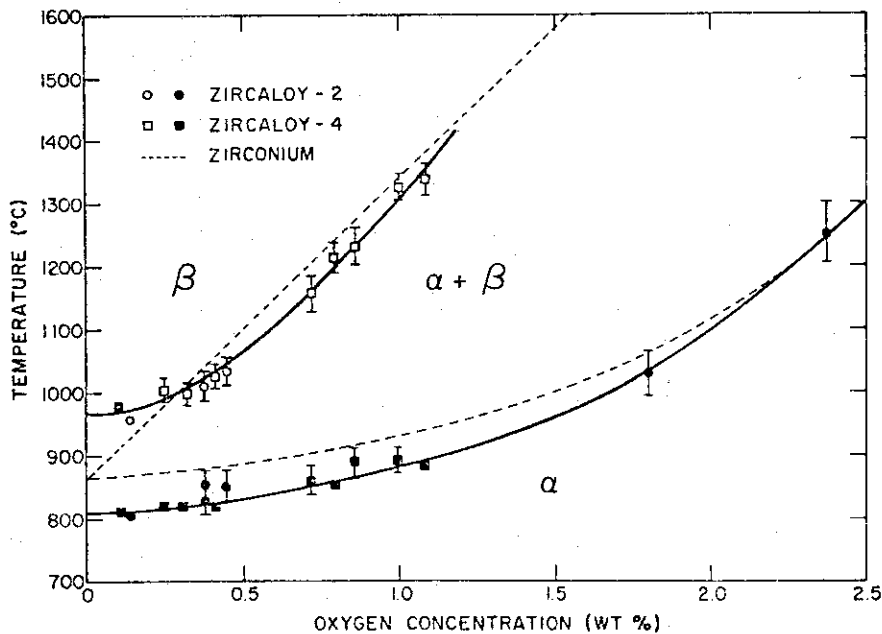


Fig. 3-18 Pseudobinary Zircaloy-Oxygen Phase Diagram Determined from Metallographic and Resistivity Measurements. Dashed line corresponds to the zirconium-oxygen system.
ANL Neg. No. 306-76-82.²¹⁾

3.4 照射効果

LOCA 時の被覆管挙動を考える際、一般には照射による影響も考慮しなければならない。照射による影響のうち最も重要なのは照射脆化であると考えられる。ジルカロイの照射損傷は過去において、約 500℃ 以上では完全に回復してしまうことが指摘されていたが、^{22) 23)} 最近 LOCA 時のように短い時間では完全に回復しないことが判ってきた。²⁾ 照射損傷のうち、ヘリウム損傷に着目して、ジルカロイの全寿命中に生じるであろうと推定されるヘリウム量をサイクロトロンで注入し、その後の回復過程を調べたものとして Furuta……et al の研究がある。^{24) 25)} これによると、ヘリウム注入したものの応力破断特性は、破断応力の低下と破断寿命の短縮が認められている。また、破断伸びは減少せずむしろ増加する傾向にある。そして、結論として、LOCA 時の被覆管挙動を考える際、ヘリウムの効果を考慮すべきであるとしている。

また、照射損傷を総合的に捕えるため実際の原子炉で照射したジルカロイ・クラッドの回復を調べたものとして Bauer……et al. の実験がある。彼らはプロGRESS・レポートとして一連の報告をしているが^{26) 27) 28) 29) 30)}、これらをまとめた報告が 4th Light Water Reactor Safety Information Meeting (1976, Gaithersburg) の会議でなされているので、以下これの紹介を行う。

文献名：Transient Annealing of Irradiation Damage in Zircaloy, 4th LWR
Safety Inf. Meeting F-10 (1976) by A.A. Bauer, J.S. Perrin and
L. Lowry

内 容：Robinson Power reactor で約 31,000 MWD/T ($4.4 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2 > 1 \text{ MeV}$) 迄照射したジルカロイ被覆管の硬度、引張、内圧破壊試験を焼なまし後実施した。焼なまし条件は transient 条件 (一定の加熱速度で目的温度迄加熱し、ヘリウムのジェットで急冷) と isothermal anneal (50°F/sec で目的温度迄加熱し、一定時間保持し急冷) の 2 通りの条件で行い、強度・延性の変化を調べる目的で実施した。

主な結果は以下のとおりである。

スプー硬さの最大値は transient 及び isothermal anneal とともに 900°F ($\sim 490^\circ\text{C}$) のところにあり、硬さは、焼なまし温度、時間が上昇するにつれ、徐々に減少する。一般的に硬さの値は、焼なましの温度のみに依存し、加熱速度・時間には余り影響されない。

(Fig. 3-19 参照)

引張試験の結果によると、transient anneal の場合加熱速度が大きくなると (最大 50°F/sec)、降伏点・引張強さ共にピーク値が 900°F ($\sim 490^\circ\text{C}$) からズレて高い方に移行する傾向にある。伸びで定義した延性の回復は強度に比べて更に遅れるようで、これは加熱速度が大きくなる程顕著である。例えば、 50°F/sec (10°C/sec) で transient anneal した場合、強度は 550°F ($\sim 290^\circ\text{C}$) で最大値を示し、その後最高温度が上昇するにつれて $1,300^\circ\text{F}$ ($\sim 700^\circ\text{C}$) 迄減少し続け、それ以上の温度ではほとんど変化しないのに対し伸び量は $1,100^\circ\text{F}$ ($\sim 590^\circ\text{C}$) 迄ほとんど回復せず、 $1,100 \sim 1,800^\circ\text{F}$ ($\sim 980^\circ\text{C}$) で増加している。(Fig. 3-20 参照) また、伸びを均一伸びと全伸びに分けて考えた場合、 50°F/sec

の加熱速度の時、均一伸びは回復が起こる迄 ($1,100^{\circ}\text{F}$) 一定で、その後最高温度が上昇するにつれて、伸び量も徐々に増えるのに対し、全伸びは一時減少する領域があり、約 $1,100^{\circ}\text{F}$ ($\sim 590^{\circ}\text{C}$) で最小値を示し、その後最高温度が上昇するにつれ、伸び量が増える。

(Fig. 3-21 参照)

試料に及ぼす熱の影響を調べるため、非照射材に同一の熱履歴を与えての試験も行ったが、その結果、焼なましの効果は照射材ほど顕著ではなく、全伸びの極小値は存在しなかった。

(Fig. 3-21 参照)

内圧破壊試験は予備的に行ったものであるが、定性的には引張試験の結果と同様な傾向を示した。但し、加熱速度依存性は引張試験程大きくなく、また伸びの最高温度に対する極小値は全伸び、均一伸び共に現われた。

まとめ：上述した文献報告の結果に基づくと、照射脆化の回復は transient anneal の場合、LOCA 時の条件では完全に回復しない可能性がある。特に伸び量は $\sim 980^{\circ}\text{C}$ 付近で極小値を示すので、解析等の際注意を要するものと思われる。しかし、 $50^{\circ}\text{F}/\text{sec}$ ($10^{\circ}\text{C}/\text{sec}$) の加熱速度でも $1,800^{\circ}\text{F}$ ($\sim 980^{\circ}\text{C}$) 迄温度が上昇すれば、伸び量も完全に回復するので照射脆化は考慮しなくても良いことになる。

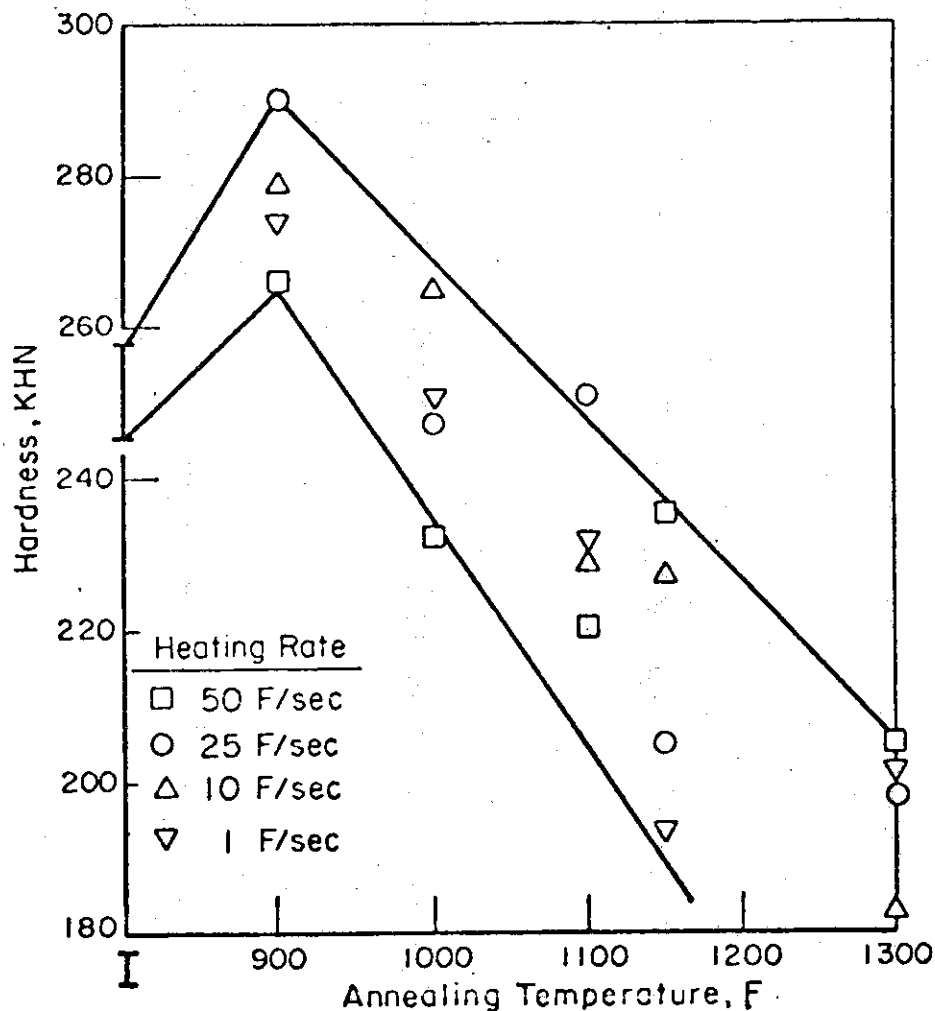


Fig. 3-19 Effect of heating in a transient to the maximum annealing temperature indicated (zero hold time at temperature)²⁶⁻³⁰⁾

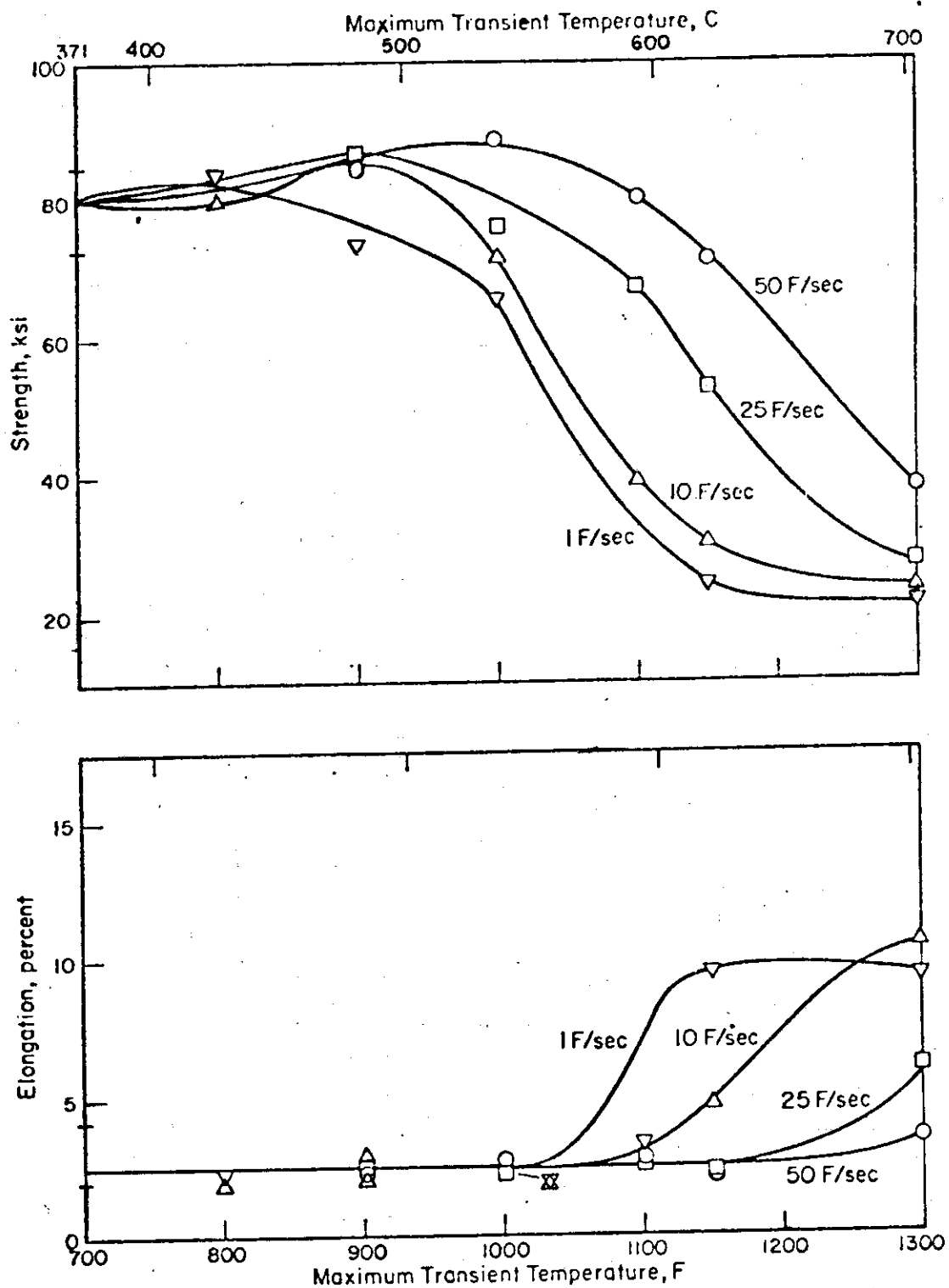


Fig. 3-20 Effect of transient heating rate and maximum temperature achieved in ²⁶⁻³⁰ transient on 0.2 percent offset yield strength and uniform elongation of irradiated zircaloy tubing, test temperature, 700F(371C)

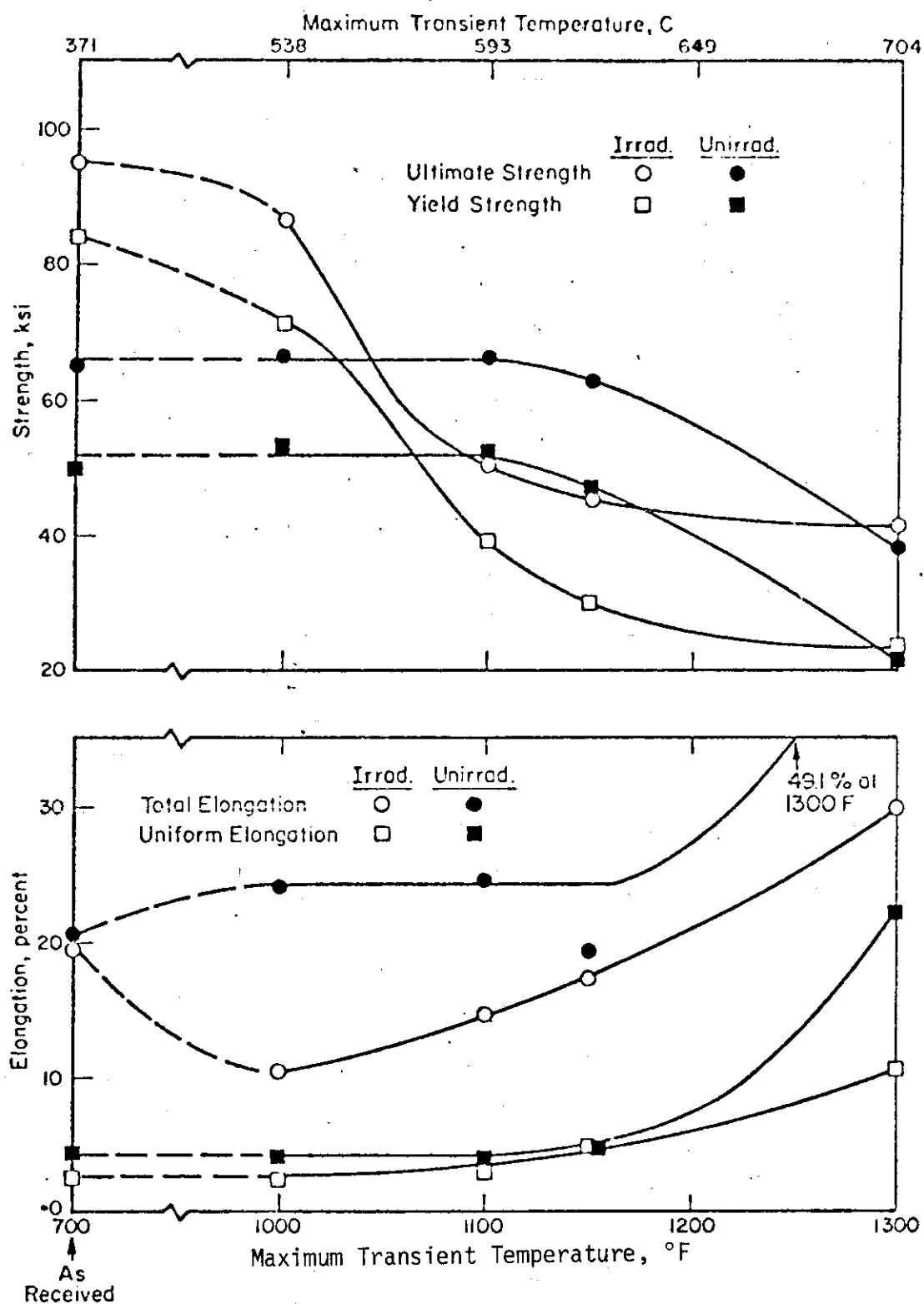


Fig. 3-21 Comparison of the effect of transient heating at 10F/sec to indicated²⁶⁻³⁰⁾ temperature on strength and ductility of irradiated and unirradiated zircaloy tubing, test temperature, 700°F

3.5 参 考 文 献

- (1) Emery, A.D., et al.: Nucl. Technol. 11 474 (1971)
- (2) Hobson, D.O., et al.: *ibid.* 11 479 (1971)
- (3) Chapman, R.H., et al.: CSNI Meeting (1976)
- (4) Chung, H.M., et al.: ASTM Meeting (1976)
- (5) Clay, B.D., et al.: CSNI Meeting (1976)
- (6) Weidinger, H.G., et al.: *ibid.*
- (7) Hardy, D.G.: CONF-730304 (1973)
- (8) Malém, K.: CSNI Meeting (1976)
- (9) Jones, P.M.: *ibid.*
- (10) Morize, P., et al.: *ibid.*
- (11) Petersen, C.: KFK-Ext. 6/73-6 (1973)
(translated Gerates, R., Bell, L.G.,: AECL-5101 (1975))
- (12) White, J.F.,: GEMP-1012 (pt.:2) 203-252
- (13) Luton, M.J., Jonas, J.J.: Can. Metallurg. Quarterly, 11 (1972) 79
- (14) Woods, C.R.: WARD-TM-585, Appendix C
- (15) Scatt, D.B.: WCAP-3269-41, (1965)
- (16) White, J.F., et al.: GEAP-475A (1967) 261
- (17) Bocek, M., Petersen, C.: CSNI Meeting (1976)
- (18) Chung, H.M., et al.: ANL-Quarterly Rep., Oct.-Dec. (1975)
- (19) Chung, H.M., et al.: ANL-75-28 (1975)
- (20) *ibid.* : ANL-75-76 (1976)
- (21) *ibid.* : ANL-75-49 (1975)
- (22) Brassfield, H.C., et al.: GEMP-482 (1968)
- (23) Junke, E.F., et al.: GEMP-731 (1970)
- (24) Furuta, T., Kawasaki, S.: J. Nucl. Science and Technol. 11 (1974)
268
- (25) 古田 照夫, 川崎 了: JAERI-M-5749 (1974).
- (26) Bauer, A.A., et al.: BMI-1935 (1975)
- (27) *ibid.* : BMI-1938 (1975)
- (28) *ibid.* : BMI-1942 (1975)
- (29) *ibid.* : BMI-NUREG-1948 (1976)
- (30) *ibid.* : BMI-NUREG-1956 (1976)

- (31) Lorentz, R. A., Hobson, D. O. and Parker G. W.
Fuel Rod Failure under Loss-of-Coolant Conditions in TREAT. Nucl. Technol., 11 (1971) 502
- (32) Emmerich, K.M., Junke, E. F. and White, J. F.
Failure of Pressurized Zircaloy Tubes during Thermal Excursions in Steam and in inert Atmosphere
Applications - Related Phenomena for Zirconium and its Alloys
ASTM - STP 458, (1969) 252
- (33) Rose, K. M. and Hindel, E. D.
The Deformation of Zircaloy - 2 Fuel Cladding under Loss-of-Coolant Accident Transients
British Nucl. Energy Soc. Conference, Oct. (1973) Paper 83
- (34) Healley, T., Evans, H. E. and Duffey, R. B.
Deformation and Rupture of Pressurized and transiently heated Zircaloy Tube
J. Br. Nucl. Energy Soc., 15 (1976) 247
- (35) Kato, M., Ogata, S., Takada, Y. and Mizuta, M.
1975 Fall Meeting of Atomic Energy Soc. of Japan, Proceeding G - 9
- (36) Furuta, T., Hashimoto, M., Otomo, T., Kawasaki, S. and Honma, K.
Deformation and Inner Oxidation of the Fuel Rod in a Loss-of-Coolant Accident Condition
JAERI - M - 6339, Dec. (1975)
- (37) Furuta, T., Kawasaki, S., Hashimoto, M. and Otomo, T.
Factors influencing Deformation and Wall Thickness of Fuel Rods under a Loss-of-Coolant Accident
JAERI - M - 6542, May (1976)
- (38) Hunt, C. E. L., Foote, D. E. and Grant, D.
The Effect of Steam Oxidation on the Strain of Fuel Sheathing at High Temperature
Specialists' Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spatind, Norway, Sep. (1976)
- (39) Hindle, E. D. and Mowat, J. A. S.
Swelling-Behaviour of SGHWR Fuel Cladding in Steam in Laboratory Tests simulating LOCA involving Temperature above 900°C
Specialists' Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements

under Accident Conditions, Spatind, Norway, Sep. (1976)

- (40) Morize, P. and Vidal, H.

Zircaloy Cladding Diametral Expansion during a LOCA - EDGAR
programme Specialists' Meeting on the Behaviour of Water Reactor
Fuel Elements under Accident Conditions, Spatind, Norway, Sep.
(1976)

- (41) 角田道己, 他

日本原子力学会昭和51年 年会

- (42) 角田道己, 他

ibid.

4. ジルカロイ-水蒸気反応による脆化

4.1 ジルカロイ-水蒸気反応試料の延性

高温水蒸気中で酸化したジルカロイの延性測定は、国内ではMAPI, NRIM, JAERIが行っている。この内MAPIとJAERIは管状試料のリング圧縮試験, NRIM では板材の3点曲げ試験によって延性を評価している。

MAPIはPWR サイズで巾5mm のジルカロイ-4管試料を水蒸気中酸化後、室温、200, 400℃ でリング圧縮試験を行った⁽¹⁾。延性はTotal Ductility, Partial Ductility, Zero Ductility の3つに分類する方法と、試料に割れが入る迄の変位量で表す方法の二つを用いている。なお後者の方法では、割れが入った時の強度も求めている。Fig. 4-1~4 はMAPI の試験結果であり、Fig. 4-4以外は酸化層厚の関数として表示されているが、この試験では酸化膜厚と安定化 α 相厚とは一義的な関係があり、酸化膜からHobson の提案したFw に換算出来ると述べている。

NRIM では0.7厚 $\times$ 20 $\times$ 20mm のジルカロイ-2板材の水蒸気酸化試料の延性を、支持間隔10mm の3点曲げ試験で求めた⁽²⁾。曲げ試験は室温で行い、延性は割れが入る迄のたわみ量で表した。Fig. 4-5は延性を反応温度の関数として表したものである。なお曲げ試験は4mm のたわみで止めたので、図中の4mm のたわみ量は、それ以上の延性があることを意味している。

JAERIはPWR サイズで巾15mmのジルカロイ-4管を水蒸気酸化後、100℃でリング圧縮試験を行った⁽³⁾⁽⁴⁾。延性はMAPI の場合と同様に、試料に割れが入る迄の変位量で表しているが、割れの発生は応力の低下と対応するとの観察及考察⁽⁵⁾から、応力-歪線図を使って延性を求めている。

Fig. 4-6は反応材の延性を酸化量の関数として示したものである。この内950℃ 反応材は酸化量が少いにもかかわらず著しく脆化しているが、5 mg/cm² 程度酸化させるのに数十分かかるため、大口径の破断で被覆管が高温になる時間が数分に過ぎないLOCA条件とは大いに異なるため、この事実は問題にすることはない。

なお第2章で述べたように、950℃ では予めオートクレーブ処理した試料は酸化速度が遅いが、Fig. 4-7に示すように、反応時間が同じであれば、前処理の効果によって反応量に差が生じて、酸化後の延性は変わらない。

上述の試験結果をBaker-Just の反応定数によって計算した酸化量の関数としてFig. 4-8 にまとめた。これらの試験は試料、試験方法、延性の表示法が互に異なるので、縦軸の定量的な値の比較は意味を持たないが、いずれの結果によっても、“ECCS性能評価指針”の1,200℃以下、15%以下の酸化では試料に延性が残っていることが認められる。MAPIとJAERIの試験は試料の組成、形状、試験方法に共通点が多く見られるが、延性は低酸化側ではJAERIの結果が高く、高酸化側ではMAPIの方が高くなっている。これはリング圧縮試験温度がJAERIが100℃、MAPIが室温であることと、JAERIの圧縮速度がMAPIの8倍であったためであろう。なお、各研究グループの試験条件をTable 4-1に示す。

ジルカロイ-水蒸気反応による脆化現象考察のための関連試験についてもいくつか試みられている。

MAP Iでは水蒸気反応試料の β 相中心部の酸素濃度-硬化-延性の関係を調べ、酸素濃度の高い試料は硬さも高く、脆化も著るしいとの結果を得た⁽⁶⁾。又脆化に及ぼす反応温度からの冷却速度の影響も調べており、冷却速度が遅くなれば脆化が少し促進されると述べている。

NRIM では水蒸気反応試料の酸化層と金属相中の酸素分配比率を求めた⁽²⁾。酸化層中の酸素割合は、酸化初期に非常に高く、酸化の進行と共に急激に下り、更に少し上昇して、その後は一定になった。

JAERIでは酸素雰囲気で表面を酸化した試料を真空中で拡散加熱し、拡散時間と試料の延性の関係を調べた⁽⁷⁾。延性は或る時間迄は拡散時間と共に低下するが、それ以後は逆に増加する。即ち延性に寄与する因子は試料中心部の酸素濃度（この濃度は拡散時間と共に増加して、或る値に近づく。）以外にも無視し得ないものがあると思われる。しかしこの因子については未解明である。

Table 4-1 Conditions of Ductility Tests

Exp. Lab.	Specimen (mm)	Cond. of Oxyd. Test		Cond. of Duct. Test	
		temp. (°C)	st. flow rate (g/cm ² ·min)	method temp. (°C)	def. speed (mm/min)
MAPI ¹⁾ 6)	Zry-4 tubing 10.72 ₀ .D. × 0.62 _t × 5 _l	920~1415	0.7	Ring Comp. R.T. 200 400	0.5 2.5
NRIM ²⁾	Zry-2 sheet 0.7 _t × 20 × 20	900~1300	0.75	Bend. R.T.	2
JAERI ³⁾ 4)	Zry-4 tubing 10.75 ₀ .D. × 0.72 _t × 15 _l	950~1330	0.4	Ring Comp. 100	20

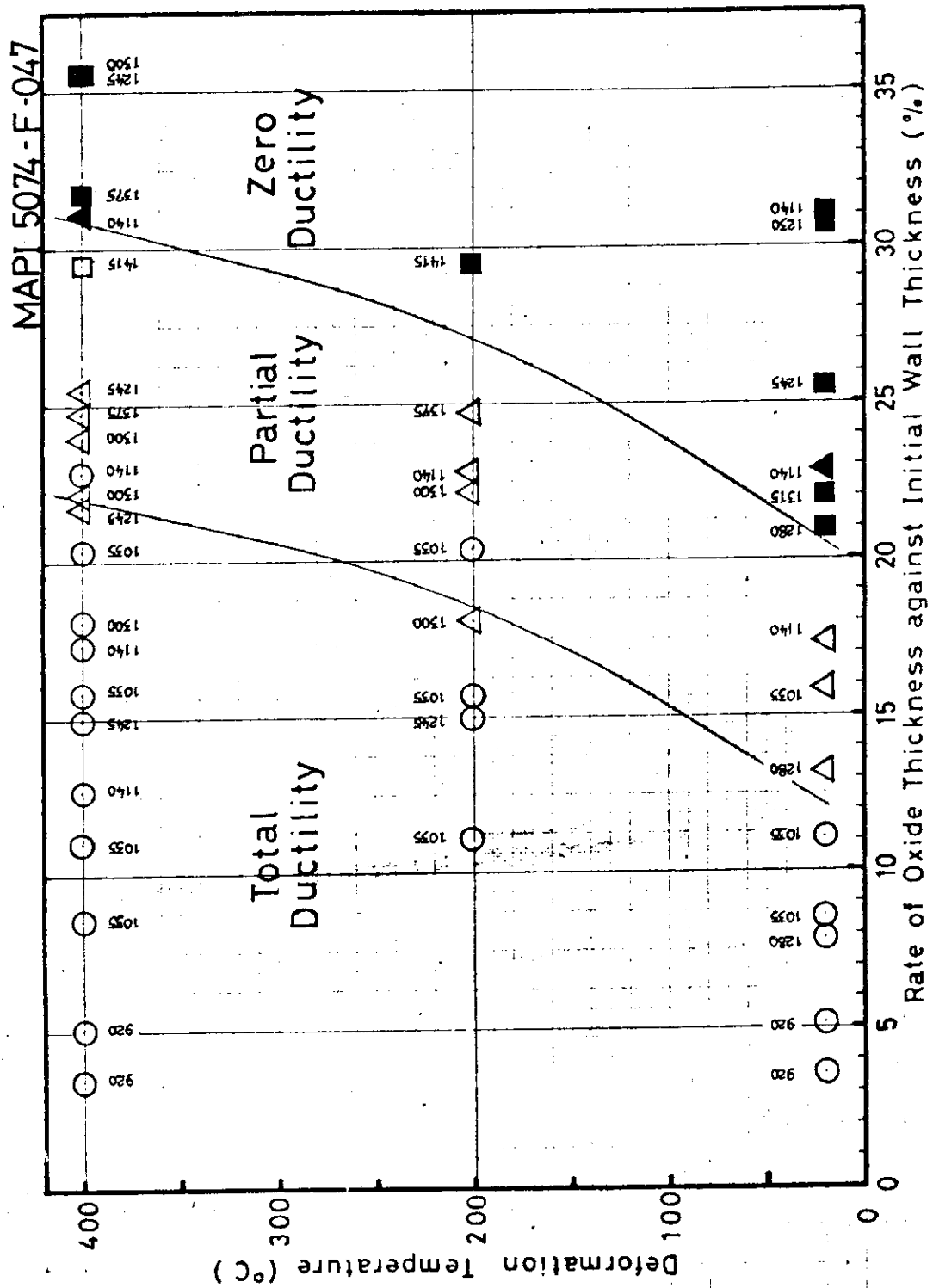


Fig. 4-1 SPECIMEN DUCTILITY AS FUNCTION OF DEFORMATION TEMPERATURE AND RATE OF OXIDE THICKNESS AGAINST INITIAL WALL THICKNESS¹⁾

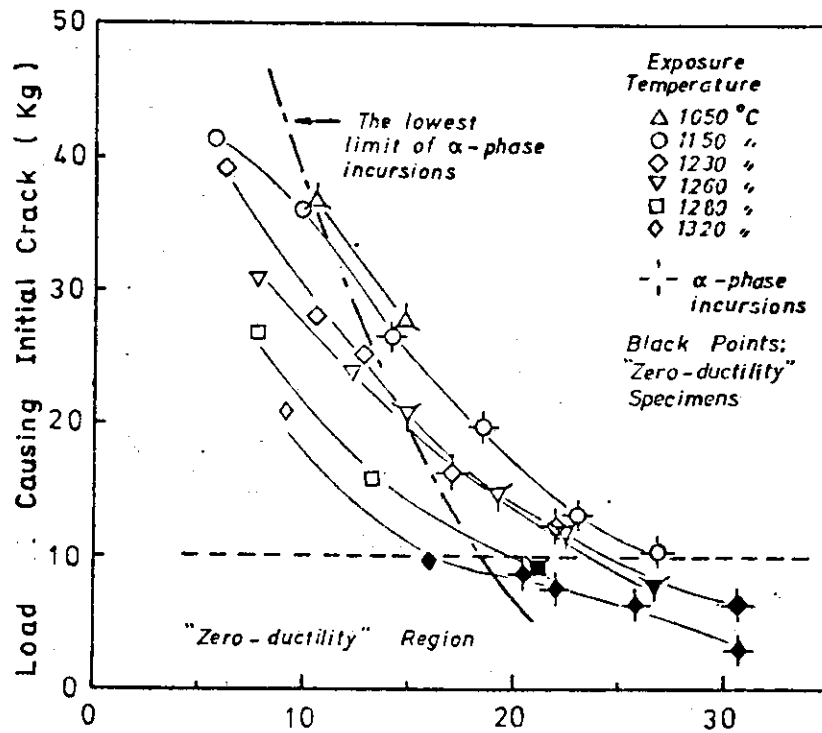


Fig. 4-2 Ratio of Oxide Thickness to Original Wall Thickness (%)
RESIDUAL STRENGTH AGAINST AMOUNT OF OXIDATION¹⁾

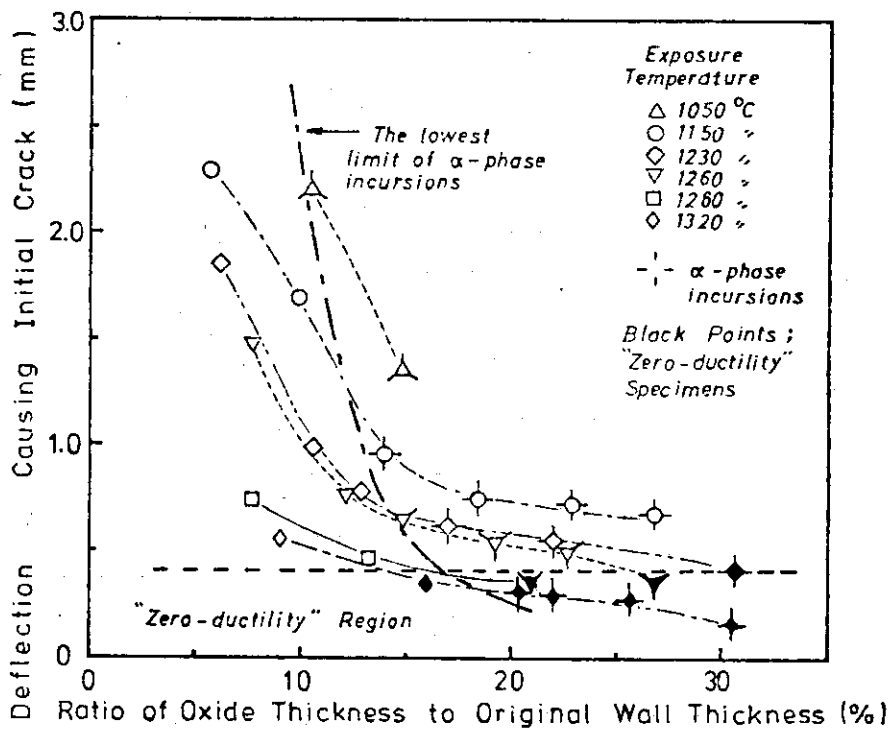


Fig. 4-3 RESIDUAL DUCTILITY AGAINST AMOUNT OF OXIDATION¹⁾

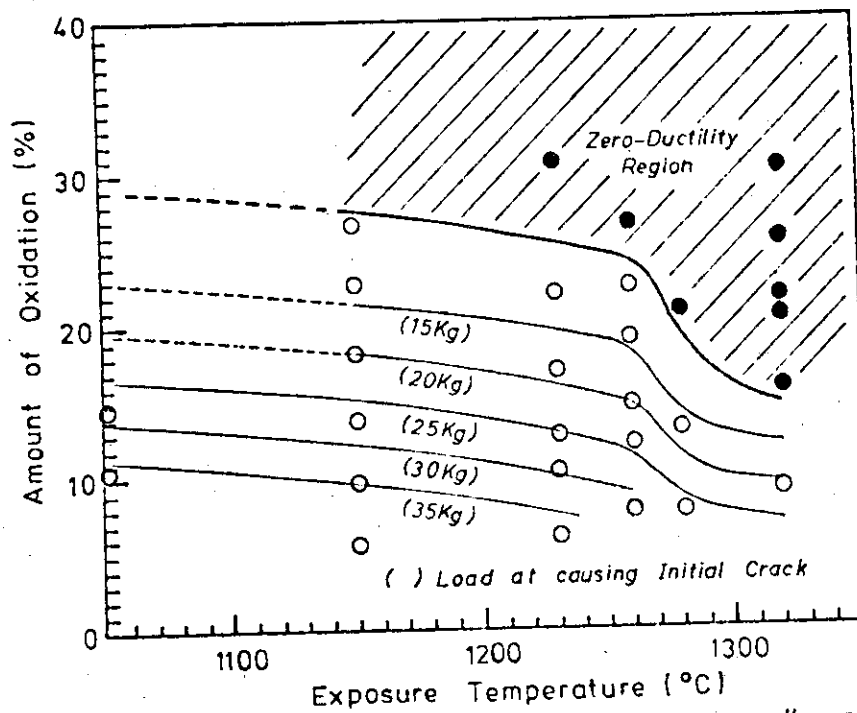


Fig. 4-4 ISO-STRENGTH LINES AND "ZERO-DUCTILITY" REGION AS A FUNCTION OF TEMPERATURE AND AMOUNT OF OXIDATION¹⁾

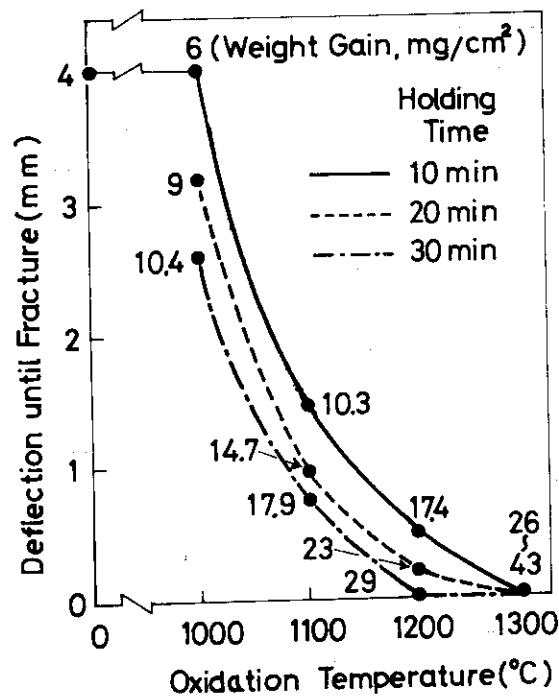


Fig. 4-5 Effect of heating temperature in steam on the bending properties of zircaloy-2. (the weight gain after the test)²⁾

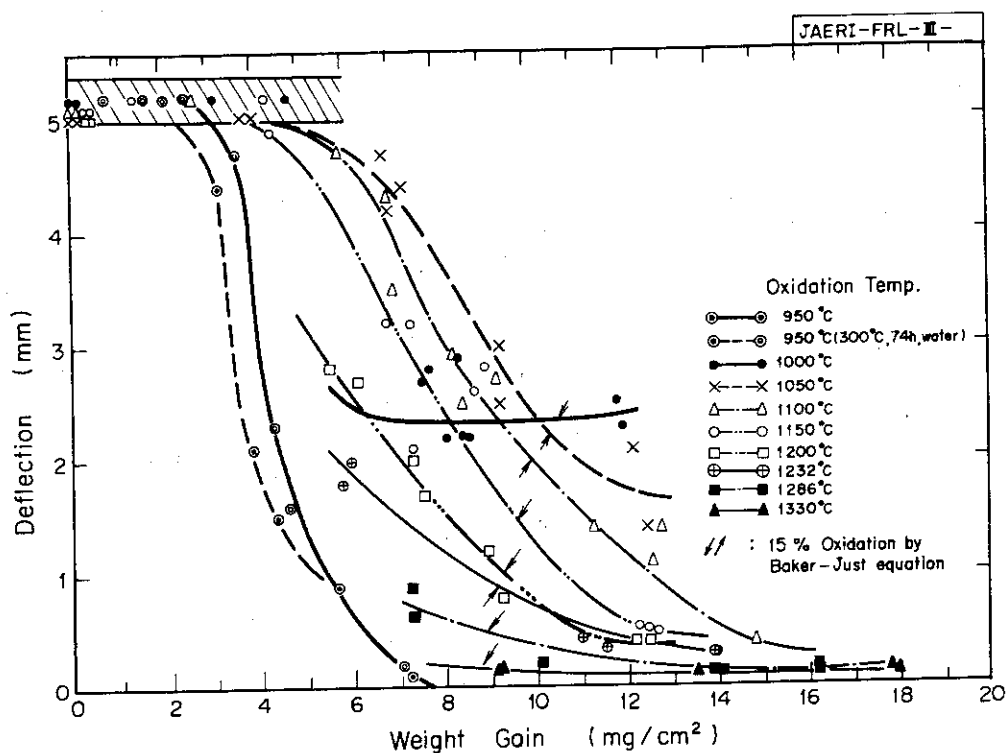


Fig. 4-6 Ductilities of Steam Reacted Zircaloy-4 Tubes as Functions³⁾ of Reacted Amounts and Reacted Temperatures (Test Temp: 100°C)

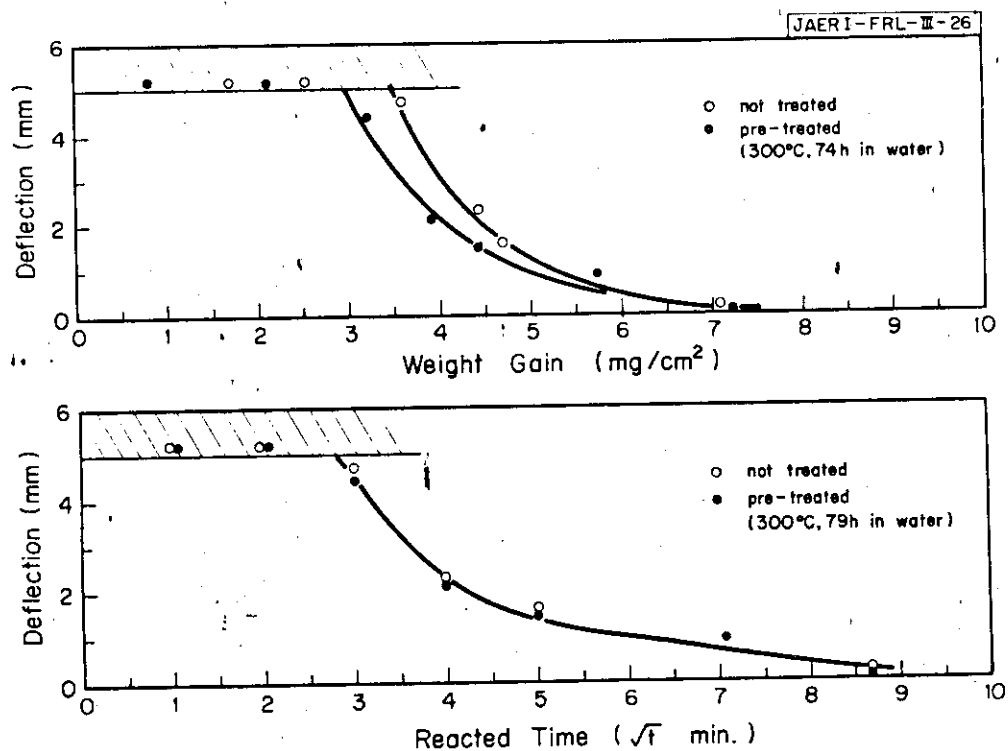
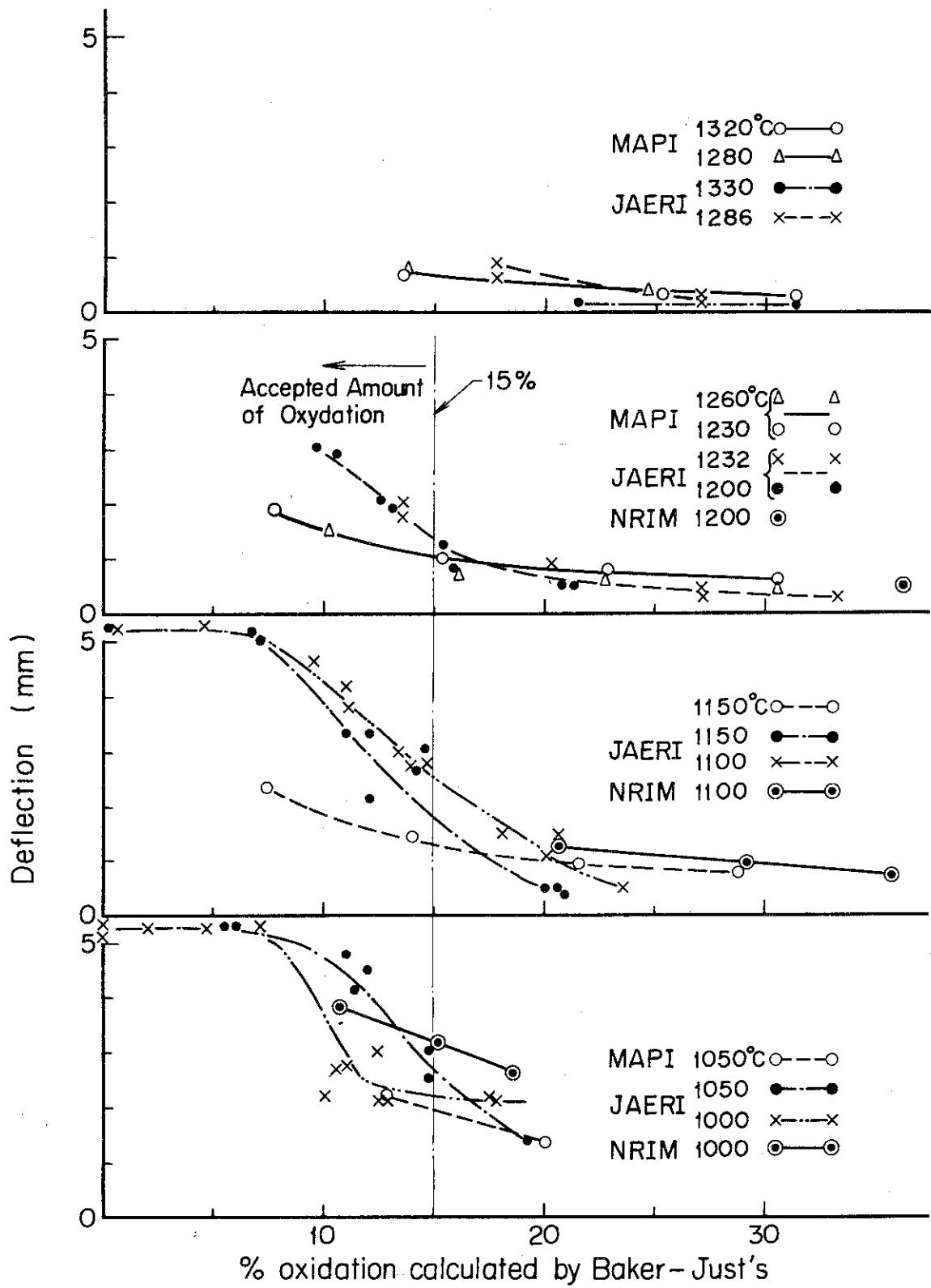


Fig. 4-7 Ductilities of Steam Reacted Zircaloy-4 Tubes as Functions³⁾ of Reacted Amounts and Reacted Time at 950°C (Test Temp: 100°C)

Fig. 4-8 Ductility of Steam Oxidized Zircaloy¹⁻⁴⁾

4.2 ORNLにおける酸化ジルカロイ管の機械的性質評価

ORNL においては、高温水蒸気中で酸化したジルカロイ管の脆化挙動を検討するため、2 種類のリング圧縮試験を実施し、酸化量と脆化の関係を評価している。

4.2.1 衝撃圧縮試験⁽⁸⁾

1,700 °F から 2,500 °F の高温水蒸気中に 2~60 分間、等温保持した PWR サイズのジルカロイ被覆管を 0.25 inch (6.4mm) 長さのリング試験片に切断し、これらを室温から 1,900 °F までの各種温度で衝撃圧縮試験を実施した。酸化量と脆化の関係の評価において、酸化量をあらわす因子として、酸化後の管肉厚に占める一旦 β 相になった (Prior- β 相) の厚さの割合 (Fw 値) を、また脆化の程度を判断する基準として、試験片の破損状態を用いた。破損状態による脆化の評価においては、試験片に発生したクラックが酸化層および α 相にとどまり、酸素の吸収量が比較的少ないと考えられる状態を Total Ductility、試験片は 1~4 個の破片に破損したが、いくらかの塑性歪が観察される状態を Partial Ductility および破損した試験片の破片を元の管の状態に復元でき、塑性変形を生ずることなく破損している状態を Zero-Ductility と定義した。このような評価方法に基いて、酸化した試験片の脆化に関する性質を上記 3 領域に分類した。Fig. 4-9 に酸化量をあらわす Fw、および圧縮試験温度に対するそれぞれの領域の分布を示す。

Zero-Ductility 領域への境界は温度の上昇につれて、被覆管延性の回復のため、酸化量が大きい低 Fw 値へ移行する。被覆管の脆化は低温度ほどよりきびしい評価を与えるが、本試験においては室温で Fw 値が約 0.75 以下になる酸化量で、被覆管は完全に脆化する結果を示している。

4.2.2 低歪速度によるリング圧縮試験

上記衝撃圧縮試験に供されたと同様な酸化試験片を室温、200 (93°C) および 300 °F (149°C) において、0.1 in/min (2.5 mm/min) の圧縮速度でリング圧縮試験を実施し、荷重-変位曲線によって試験片の脆化を評価した。本試験による評価においても、酸化量としては Fw 値を用い、また脆化を判断する基準として、0.15 inch (3.8mm) の圧縮変形量まで破損しない状態を Total-Ductility、0.15 inch (3.8mm) までの圧縮変形中に少くとも一度は肉厚を貫通するクラックを生じるか、クラックはある程度の塑性変形後に生じる状態を Partial-Ductility および、ほとんど塑性変形なしに破損する状態を Zero-Ductility と定義した。

上記の定義に従い、Fw 値および圧縮試験温度に対する脆化の程度を分類した結果を Fig. 4-10 に示す。1,700 °F (927°C) から 2,200 °F (1,204°C) までの温度で酸化した試験片では、脆化の程度を Fw 値によって良くあらわすことができるのに対して、2,400 °F (1,316°C) で酸化した試験片においては、それ以下の温度で酸化したと同様な Fw 値を持つ試験片で

も、より大きな脆化が観察され、脆化の程度を Fw 値のみによって評価することは不可能であった。したがって、各領域の境界を設定するにあたっては、 $2,400^{\circ}\text{F}$ ($1,316^{\circ}\text{C}$) で酸化された試験片の圧縮試験結果は削除されている。室温においては、Zero-Ductility 領域は約 0.65 以下の Fw 値に分布し、衝撃圧縮試験結果と比較し、小さい値に移行している。

高温水蒸気中で酸化されたジルカロイの脆化は、酸化量である Fw 値だけでなく酸化温度にも依存することが観察された。そこで酸化温度が異なる試験片の中央部の硬度測定を実施した。その結果を Fig. 4-11 に示す。同一 Fw 値であっても、酸化温度の上昇と共に硬度は増加し、 β 相中の酸素濃度が高いと推測される。この結果、 $2,200^{\circ}\text{F}$ ($1,204^{\circ}\text{C}$) と $2,400^{\circ}\text{F}$ ($1,316^{\circ}\text{C}$) の間のある温度以上での著しい脆化の増大は温度上昇に伴う β 相中の酸素固溶度の増加、および酸素の拡散速度の増加によって生じたものと判断された。

硬度試験結果を圧縮試験結果と対応すると、Zero-Ductility は酸化温度に依らず約 330 から 345 DPH 以上の硬度で生じることが示されている。

Hobson DUCTILE-BRITTLE BEHAVIOR

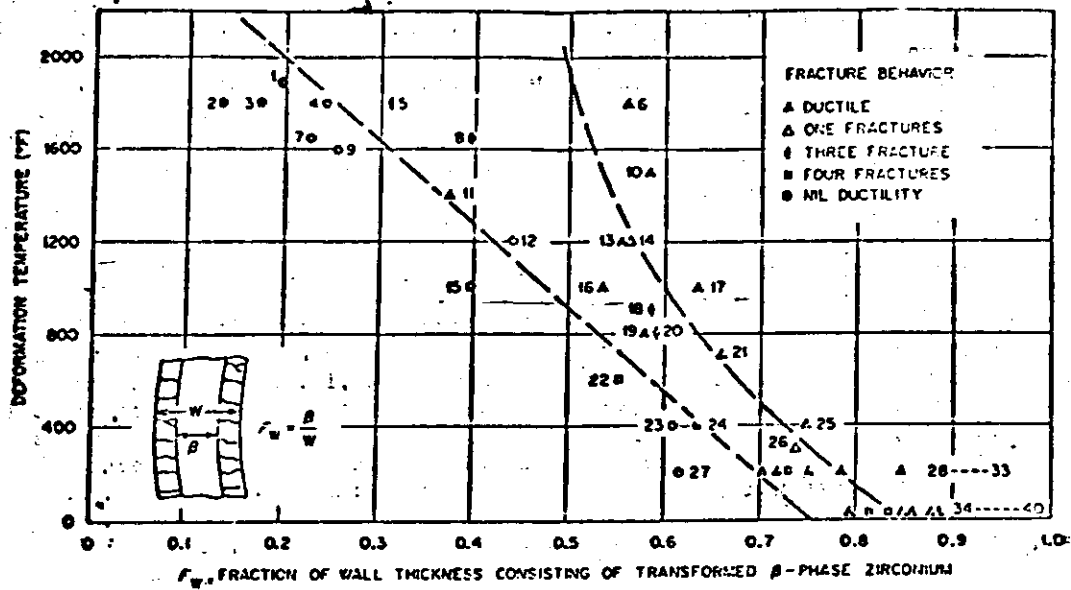


Fig. 4-9 Specimen ductility as a function of deformation temperature and fraction of as-oxidized wall thickness (F_w) consisting of transformed β phase for the high-strain-rate tests.⁸⁾

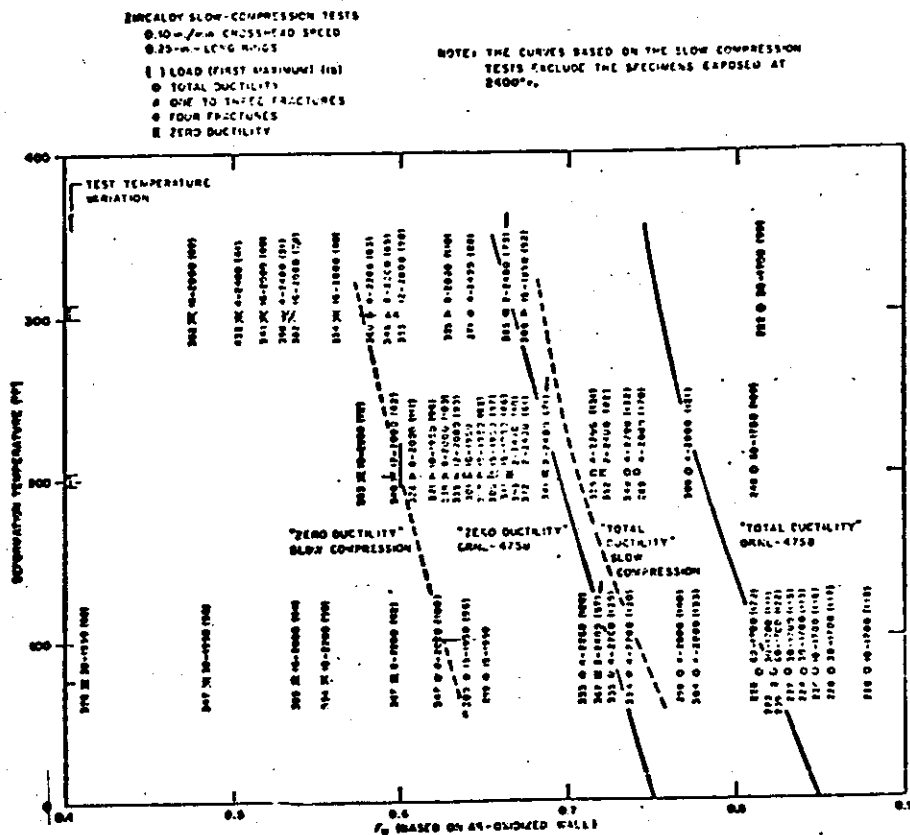


Fig. 4-10 Specimen ductility as a function of deformation temperature and fraction of as-oxidized wall thickness (F_w) consisting of transformed β phase for the low-strain-rate tests.

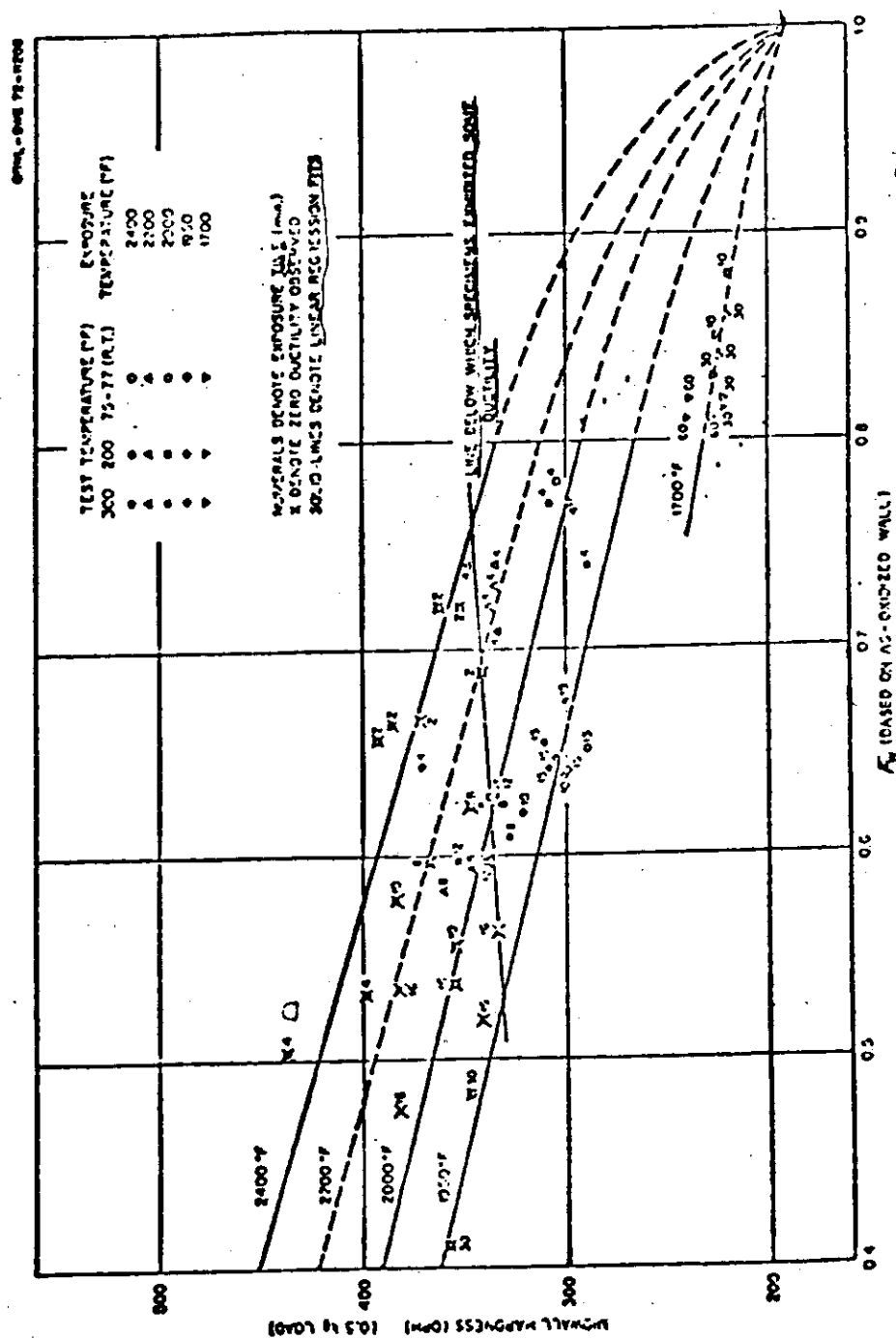


Fig. 4-11 Specimen midwall hardness as a function of R_m . Linear regression fits to the data for 1950, 2000, 2400°F treatments are shown as solid lines. Dashed lines are visual fits drawn parallel to the others for 1700 and 2200°F treatments and to fit the lines to 190 DPH for unoxidized material. [Ref.: L.S. Rubenstein et al., Trans. Amer. Soc. Metals 54, 20-30 (1961)]

4.3 参 考 文 献

- (1) 小松和志他：日本原子力学会昭和50年度燃料材料分科会
- (2) 池田清一，伊藤伍郎，大橋重雄；日本金属学会誌，39，(1975)712
- (3) 古田照夫他；JAERI-M-6601(1976)
- (4) 鈴木元衛，川崎了，古田照夫；JAERI-M-6879(1977)
- (5) 山田礼司，鈴木元衛，原山泰雄；JAERI-M-6690(1976)
- (6) Komatsu, K., et al: CSN1 Specialist Meeting (1976)
- (7) 古田照夫，橋本政男，川崎了；JAERI-M-6182(1975)
- (8) Hobson, D.O., Rittenhouse, P.L.: ORNL-4758 (1972)
- (9) Komatsu, K., Takada, Y., Mizuta, M. and Takahashi, S.
The Effects of Oxidation Temperature and Slow Cooldown on Ductile-Brittle Behaviour of Zircaloy Fuel Cladding. Specialists' Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spåtind, Norway, Sept. (1976)
- (10) Merservey, R. H. and Herzel, R.
Brittle Behaviour of Zircaloy in an Emergency Core Cooling Environment IN - 1389, Sept. (1970)
- (11) Scatena, G. J.
Behaviour of BWR/6 Fuel during LOCA
CREST Special Meeting on the Safety of Water Reactor Fuel Element Saclay, France, Oct. (1973)
- (12) I'anni, P. W.
Metal - Water Reactions - Effects on Core Cooling and Containment APED - 5454, (1968)
- (13) Bentley, M. J. and Mowat, J. A. S.
Oxidation of Zry - 2 under simulated LOCA Conditions and its Effect on Room - temperature Ductility of SGHWR Cladding
British Nucl. Energy Soc. Conference, Oct. (1973), London, Paper 82
- (14) Honma, K., Hashimoto, M., Furuta, T., Otomo, T. and Kawasaki, S.
Behaviour of inner Surface Oxidation of the Zircaloy Cladding Tube in a Loss-of-Coolant Accident
JAERI - M - 6602, June (1976)
- (15) Kawasaki, S., Furuta, T. and Honma, K.
Inner Surface Oxidation of a Fuel Cladding for LWR under a LOCA
Specialist Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spåtind, Norway, Sep. (1976)

5. LOCA時、燃料被覆温度及び圧力計算コード

5.1 被覆温度の最高値に対する種々のパラメータの影響

— SCORCH-B2のBWR 7×7 燃料集合体についての感度解析結果から —

5.1.1 感度解析計算の概要

LOCA 時の燃料棒の温度上昇（ヒートアップ）に対し、どのようなパラメータがどのような影響を与えるかということは、極めて重要なことである。それゆえ、BWRのヒートアップ計算コードSCORCH-B2を用いて、大破断LOCA時の7×7燃料集合体の場合を対象として、入力データの感度解析計算を行った。以下、その結果を報告する。

感度解析計算は次のような手順で行った。まず、典型的な大破断の1例を標準計算として設定し、入力データの作成と計算とを行った。次に、感度解析するデータの種類とその値を定め、標準計算の場合の入力データ・セットと1変数だけ変えた計算を次々と行った。そして、各入力データの変化が、計算結果である被覆温度の応答にどのような影響をもたらしたかを調べた。

感度解析変数としては、次の8種を選んだ。(1)被覆管変形前のギャップ・コンダクタンス、(2)被覆管変形後のギャップ・コンダクタンス、(3)燃料集合体内の注目する1水平面内での燃料棒間発熱分布、(4)Shureの核分裂崩壊熱計算式にかけける倍率、(5)被覆管変形温度、(6)変形後の被覆管径の伸び率、(7)Baker-Justのジルコニウム-水反応速度の式にかけける倍率、(8)被覆管内面の初期酸化層厚さ。このほかにも、被覆温度に大きな影響を与えるであろう入力変数としては、DNBになる時刻、注目する高さが冷却材上に露出する時刻、炉心スプレイが定格になる時刻、注目する高さが再冠水する時刻、チャンネルボックス濡れ速度を計算するための各変数、被覆管表面の輻射率、ペレットの熱伝導率計算式など、限らないが、今回の感度解析では一切省略した。

感度解析する入力変数の中は、必ずしもあり得る最大範囲を選んだわけではなく、また、入力データ間の相関関係についても、考慮しなかった。たとえば、被覆管変形後のギャップ・コンダクタンスは、被覆管径の伸び率と強い相関関係があるだろうし、その被覆管径の伸び率は変形温度に依存するだろうが、今回の計算では各入力データは独立であると仮定して計算を進めた。一般に、幾つかの量の間に強い相関関係を仮定すればするほど、それらの量を土台にして計算される結果のばらつきは小さくなる。逆に、相関関係に不確定性を取り入れれば入れるほど、それらの量を土台にしての計算結果はばらつきが大きくなる。そのような見地から見れば、今回の感度解析の手法はばらつきを大きく見積っていると思われる。

このような感度解析計算の結果、おそらく最も高い被覆温度をもたらすであろうヒートアップ計算とは次のようなものであろうという結論が得られた。

- ・熱源を大きく見積ること。
- ・燃料集合体内の注目する1平面での発熱分布が一様に近いこと。
- ・定常時ギャップ・コンダクタンスが小さいこと。

- ・ 破裂温度が高いこと（破裂を遅く見つめるモデルであること）。
- ・ 破裂前ふくれを小さく見つめるモデルであること。
- ・ 破裂後歪を小さく見つめること。
- ・ 被覆管内面に初期酸化層がないこと。

ただし、このような結論は、BWRの大破断時の7×7燃料集合体の温度応答に関する結論である。8×8燃料集合体の場合には、これらの結論が必ずしもあてはまらないし、何よりも、7×7燃料集合体よりはるかに低い温度を計算する。まして、PWRに対しての適用性にはかなり問題がある。この報告を読む方は、この点を特に留意して欲しい。

今回の感度解析の結果、温度応答はかなりばらついたものになっているが、このばらつきは、パラメータの種類を多くとり、それらの可能な組み合わせを考えていけば一層大きくなる。そのような傾向を押さえようと思えば、前記のように、パラメータ間の拘束条件を厳しくすれば良い。すなわち、実験式なり理論式なりをふんだんに計算コードに取り入れていけば良い。しかしながら、本来ばらついている入力データ（たとえばペレットの半径）や、本来誤差を含んでいる計算式（たとえば、ギャップ・コンダクタンスの計算式）のかわりに、ひとつの入力データ、ひとつの計算式を選ぶことは、たとえそれがBE (Best Estimate) モデルとしては極めて優れたものであっても、計算コード全体の保守性をしばしば失わせてしまうことには注意を要する。今後、実験データの積み上げなどにより、各入力データのばらつき、各相関式のばらつきを正確に押さえた上で、その結果としての被覆温度のばらつきはどれくらいになるかがきちんと押さえられるようになれば望ましいことと思う。

5.1.2 SCORCH-B2 コードの概要

SCORCH-B2は、BWRがLOCAをおこしたときの、炉心ヒートアップを解析する計算コードである。計算の目的は、LOCA時にBWRの炉心が冷却可能な形状を維持するかどうかを判断することであり、それは、具体的には、LOCA期間を通しての被覆温度の最高値と被覆酸化厚の最大値とを求めることである。

SCORCH-B2は、LOCA時の燃料集合体の発熱、伝熱を解析するが、その際、次のような基本的仮定を設けている。

- (1) 核反応による発熱量は、時間だけの関数として、入力データおよび内蔵相関式によりあらかじめ与えられるものとする。
- (2) 各燃料棒を取り巻く流体の条件も、時間だけの関数として、入力データによりあらかじめ与えられるものとする。
- (3) 燃料集合体間の熱伝達は無視する。すなわち、各燃料集合体は熱的に独立に取り扱えるものとする。

(4) 軸方向熱移動は一切考えない。すなわち、各燃料集合体の各高さは熱的に独立に取り扱えるものとする。

(5) 各燃料棒内で、あらゆる物理量は周方向に一樣とする。すなわち、燃料棒内の熱の流れは半径方向一次元である。

このような仮定の結果、SCORCH-B2 が考慮しなければならない最小限度の計算体系がおのずと定まる。それは、Fig. 5-1 に示すような、ある燃料集合体のある高さにある1平面である。通常は、最高出力燃料集合体の最高出力高さを選ぶ。燃料棒は、より少数の群に分類され、また、各燃料棒は半径方向に幾つかの円環に分割される。このような体系について、SCORCH-B2は、各時間ごとに、燃料棒およびチャンネルボックスからそれを取り巻く水もしくは蒸気への対流伝熱量を計算し、また、燃料棒間および燃料棒-チャンネルボックス間の輻射伝熱量を計算する。そして、それらを境界条件として、各燃料棒内で熱伝導方程式を解き、過渡温度変化を求めるプログラムである。

SCORCH-B2の特徴を列挙すると、次のとおりである。

- ・ 炉停止後の核分裂熱は、時間依存の入力データで与える。
- ・ 核分裂生成物の崩壊熱は、Shure の式の無限照射時の値に入力で与える倍率（標準値は1.2）をかけて計算する。
- ・ アクチニドの崩壊熱は、無限照射を仮定して計算する。
- ・ ジルコニウム-水反応による発熱量は、被覆表面温度の変化に応じて計算される。被覆管が破裂したと計算されたら、その後は内面酸化も考慮する。反応速度は、Baker-Just の式に入力で与えるある倍率（標準値は内外両面とも1.0）をかけて計算する。
- ・ 冷却材温度と各燃料棒表面の対流熱伝達率は、時間依存の入力データで与える。
- ・ 各燃料棒は、被覆温度が入力で与えるある温度に達すると、ただちにふくれて破裂する（瞬時変形モデル）。破裂後もその形状は円形であるとし、直径の伸び率は入力データで与える。
- ・ ギャップ・コンダクタンスは、被覆管の変形前と変形後に対し、2つの値を入力データで与える。
- ・ 輻射計算に必要な燃料棒間角度因子は、正射影を用いての新しい計算法により、燃料被覆管が変形するごとに計算しなおす。

5.1.3 標準データセットの設定と計算結果

標準データ・セットは、SCORCH-B2 報告書のサンプル計算例を採用した。このデータ・セットは、ジェットポンプ付きBWRの大破断LOCAを想定して作成されたものである。主要な入力データは次のとおりである。

- ・ ペレット、被覆管、チャンネルボックスの物性値—いずれも計算コード内蔵の相関式
- ・ ギャップ・コンダクタンス—破裂前 $1,000 \text{ Btu/ft}^2 \text{ hr } ^\circ\text{F}$ ，破裂後 $50 \text{ Btu/ft}^2 \text{ hr } ^\circ\text{F}$

- ・ 燃料棒の群別—Fig. 5-2に示すような10群
 - ・ ペレットの分割数—7領域
 - ・ 燃料棒間発熱分布—Fig. 5-2に示すとおり。第2群が最高出力燃料棒で、ローカル・ピーキング係数は1.16
 - ・ Shure の核分裂生成物崩壊熱計算式にける倍率—1.2
 - ・ 被覆管変形温度—900℃
 - ・ 変形後の被覆管半径の伸び率—1.2
 - ・ Baker-Justの金属-水反応速度計算式にける倍率—被覆の内外両面とも1.0
 - ・ 冷却材温度と各群燃料棒表面での対流熱伝達率—Fig. 5-3のとおり
 - ・ 輻射熱伝達を考える時間帯—事故後20秒から150秒まで
- この入力データに対する計算結果は、Fig. 5-4に示すとおりである。

5.1.4 感度解析する入力変数の設定と計算結果

感度解析のために選んだ入力変数の種類とその値は次のとおりである。

変 数 名	単 位	標準値	感度解析用入力値
破裂前ギャップ・ コンダクタンス	cal/cm ² sec °C (Btu/ft ² hr °F)	0.1356 (1000)	0.0678, 0.1017, 0.2034, 0.2712 (500, 750, 1500, 2000)
破裂後ギャップ・ コンダクタンス	cal/cm ² sec °C (Btu/ft ² hr °F)	0.00678 (50)	0.00339, 0.01356 (25, 100)
燃料棒間発熱分布	—	→ Fig. 5-2	一様分布
Shure の式にける 倍率	—	1.2	1.0
被覆管変形温度	℃	900	800, 1000, 1100, 9999 (変形しない)
変形後の被覆管径の 伸び率	—	1.2	1.0, 1.1
Baker-Just の式に かける倍数	—	内外面とも 1.0	内面で0.25 外面で1.0
初期内面酸化厚	cm	0	0.001, 0.01

計算結果は、Fig. 5-5～Fig. 5-12 に示すとおりである。それぞれの計算結果が、標準計算と比べてどれだけ異った被覆最高温度を記録したかを記録したかをまとめると、Table 5-1 のようになる。

5.1.5 感度解析計算の結論と考察

以上の感度解析計算の結果，BWRの7×7燃料集合体の大破断時の炉心ヒートアップについて次の結果が得られた。

- (1) 定常時ギャップ・コンダクタンスが小さいほど，被覆温度は高くなる。
- (2) 変形後ギャップ・コンダクタンスが大きいほど，被覆温度は高くなる。
- (3) 7×7燃料集合体のように，周辺燃料棒が高い発熱割合を示すときは，燃料集合体内発熱分布が一様な方が被覆温度は高くなる。
- (4) 崩壊熱が大きいほど被覆温度は高くなる。
- (5) 被覆管変形温度が高いほど被覆温度は高くなる。ただし，変形温度が高すぎて変形しなかった場合には最も低い温度になる。
- (6) 変形後の被覆管径の伸び率が大きいほど被覆温度は高くなる。
- (7) 酸化速度が大きいほど被覆温度は高くなる。
- (8) 初期内面酸化層厚さが薄いほど被覆温度は高くなる。

このようなことがらをふまえ，一般にどのような計算がより安全側なのかについて考察してみる。

まず，熱源であるが，一般には熱源の大きい方が高温になる。定常時ギャップ・コンダクタンスが小さいと，蓄積熱が大きくなるため，上記の(1)の結果が得られる。崩壊熱自体が大きいときの(4)の結論は当然である。ジルコニウム-水反応による熱源は，酸化速度が大きいほど大きい。酸化速度は，酸化層厚さが薄いほど大きい。従って，(7)，(8)の結果が得られる。

次に，どの燃料棒が被覆温度の最高値を記録するか考えてみる。事故開始直後は，もちろん，発熱割合の高い燃料棒の被覆が高い温度になる。しかし，燃料棒が冷却水上に露出し，輻射による熱の移動が顕著になると，輻射熱の吸収体であるチャンネルボックスから遠いところにある中央部の燃料棒の被覆が相対的に高温になる。（これは7×7燃料集合体について言えることで，8×8燃料集合体ではウォーター・ロッドがあるため，温度分布はかなり平坦なものになる。）7×7燃料集合体内の発熱割合は，周辺部が高く中央部が低いのが普通なので，一般には発熱分布が一様分布に近いほど，すなわち，ローカル・ピーキング係数が小さいほど高い被覆温度がもたらされるという(2)の結論が得られる。

被覆管の変形は，その後の温度応答に幾つもの大きな影響を与える。その過程はFig.1-2に見られるとおりである。

被覆管がふくれることによる影響は，

- a. 外表面積の増加が対流および輻射による冷却能を増し，被覆温度を低下させる。
- b. 外表面積の増加と既にできている外面酸化層の薄化，剥離により，ジルコニウム-水反応が激しくなり，被覆温度を高くする。
- c. ギャップ・コンダクタンスが小さくなり，被覆温度を低下させる。

などである。a～cの中ではcの影響が最も大きく，一般にはふくれた後は温度の上昇速度が低下する。

被覆管が破裂することによる影響は，

d. 内面酸化が始まり，被覆温度が上昇する。

e. ギャップ中のガスの組成が変わり，ギャップ・コンダクタンスが小さくなって，被覆温度が低くなる。

d の影響が著しいのは，破裂温度が高く初期内面酸化層厚さが薄いときである。

以上，定性的な説明をしたが，Fig. 5-6, Fig. 5-9~12 および Table. 5-1の結果を考慮に入れて得られる推論は次のとおりである。

被覆管変形後の温度応答に極めて強い影響を与える因子は，変形後のギャップ・コンダクタンスと被覆管内面で始まるジルコニウム-水反応である。一般には，(2)の結果で示したように，変形後のギャップ・コンダクタンスが大きいほど温度の計算値が高くなる。したがって，変形後の被覆管径の伸び率が小さいほど高温になる。この結論は(6)の結果と矛盾するようだが，(6)の結果は歪量にかかわらず変形後のギャップ・コンダクタンスを一定としたための結論であり，Fig. 5-6とFig. 5-10を比べるとわかるように，実際にはギャップ・コンダクタンスの影響が支配的である。一方，破裂後の内面酸化が激しくなるのはいつかと考えれば，(5)，(7)，(8)の結果が得られる。

ここで，推論を補足するために，GE社のCHASTEコード⁽²⁾の計算例を参照する。このコードでは，破裂前のふくれを温度の関数として仮定している。Fig. 5-13, 14は，CHASTEコードで破裂温度を変えて計算した例である。図に示すように，破裂温度が高いほど破裂後の温度の立ち上がりが急であり，上述(5)の結果を裏づけている。また，破裂前ふくれを仮定した結果，その期間いずれも温度上昇速度が低く計算されているが，これはa~eの理由を考えれば当然の結果である。

以上まとめると，おそらく最も高い被覆温度をもたらすであろうヒートアップ計算とは次のようなものである。

- ・ 熱源が大きいこと
- ・ 燃料集合体内での発熱分布が一様に近いこと
- ・ 定常時ギャップ・コンダクタンスが小さいこと
- ・ 破裂温度が高いこと（破裂を遅く見積るモデルであること）
- ・ 破裂前歪が小さいこと
- ・ 破裂後歪が小さいこと
- ・ 破裂管内面に初期酸化層がないこと

なお，参考資料として，原研の原子炉データ解析室によってなされた，MOXY-EMについてのバラツキ解析計算例⁽³⁾を付記する。この計算は，Table. 5-2に示す6種類の入力変数について， $2 \times 4 \times 2 \times 4 \times 6 \times 4 = 1536$ 通りに匹敵する計算を行ったものである。（実際には，実験計画法を採用し，96回の計算で済ませている。）結果のバラツキは，Fig. 5-15に示すとおりである。

Table 5.1 Results of sensitivity studies by SCORCH-B2

input variable for sensitivity study	input value	clad temperature at 100 sec (°C)		clad temperature at 150 sec (°C)	
results of standard run	-	954.1	-	1138.3	-
gap conductance before cladding deformation	500	1192.2	+238.1	melted	-
(standard run input value (S.V. for short) = 1000 Btu/ft ² ·hr·°F)	750	1008.3	+ 54.2	1243.5	+105.2
	1500	913.5	- 40.6	1069.2	- 69.1
	2000	886.7	- 67.4	1041.3	- 97.0
gap conductance after cladding deformation (S.V.=50Btu/ft ² ·hr·°F)	25	944.4	- 9.7	1067.4	- 70.9
	100	962.7	+ 8.6	1173.0	+ 34.7
heat distribution within assembly (S.V.→Fig. 5.2)	flat distribution	986.4	+ 32.3	1189.8	+ 51.5
multiplier for Shure's equation (S.V.=1.2)	1.0	890.9	- 63.2	1007.5	-130.8
cladding deformation temperature (S.V.=900°C)	800	935.2	- 18.9	1133.2	- 5.1
	1000	954.6	+ 0.5	1162.6	+ 24.3
	1100	954.6	+ 0.5	1162.8	+ 24.5
(no deformation) →	9999	954.6	+ 0.5	1105.4	- 32.9
relative cladding radius after deformation (S.V.=1.2)	1.0	945.8	- 8.3	1105.3	- 33.0
	1.1	950.1	- 4.0	1121.3	- 17.0
multiplier for B & J eq. (S.Vs.=1.0, 1.0)	inside 0.25 outside 1.0	938.1	- 16.0	1089.2	- 49.1
initial oxide thickness (S.V.=0μ)	10	928.8	- 25.3	1091.1	- 47.2
	100	925.6	- 28.5	1061.7	- 76.6

Table 5.2 Input variables and their ranges in MOXY-EM uncertainty analysis (Ref.3)

input variable	variable range	number of levels
core spray initiation time (sec)	35.0 ~ 45.0	2
cladding rupture temperature (°F)	1200 ~ 2000	4
time added to Yamanouchi Eq. (sec)	0.0 ~ 60.0	2
steady-state gap conductance (Btu/ft ² ·hr·°F)	690 ~ 2060	4
reflooding time (sec)	114 ~ 174	6
spray cooling heat transfer coefficients (Btu/ft ² ·hr·°F)	3.0 ~ 6.2	4

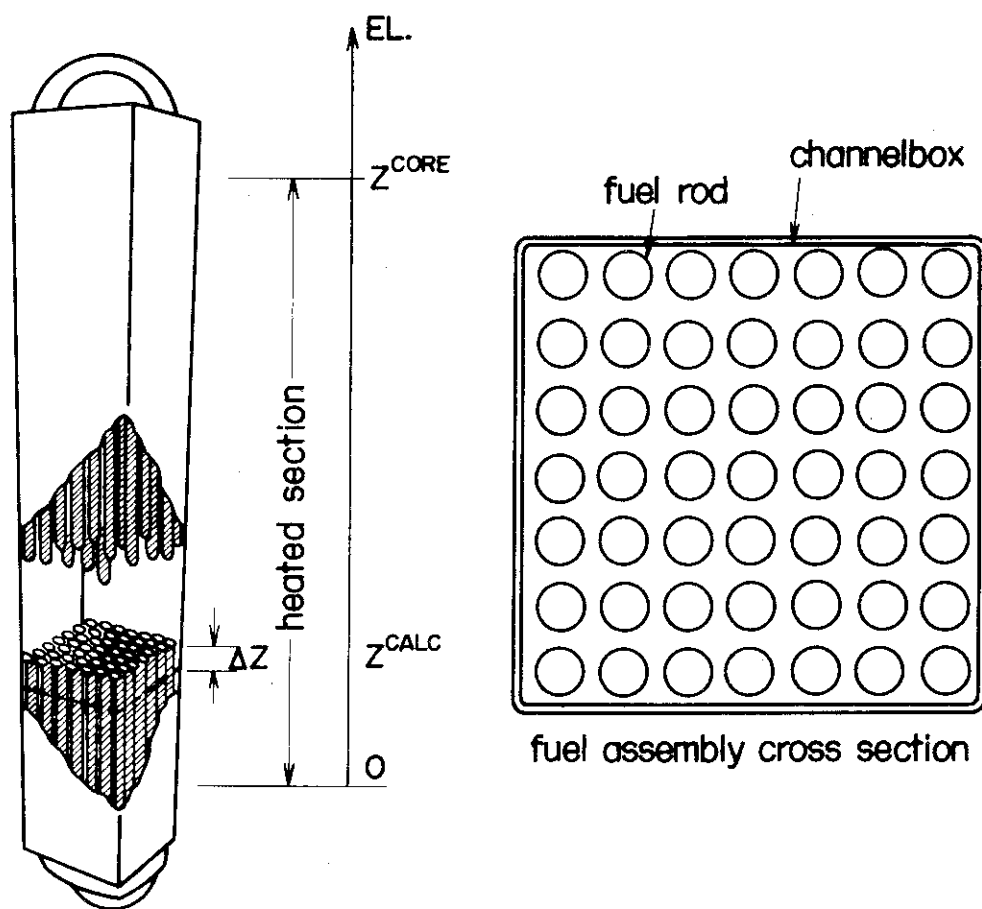


Fig. 5-1 The view of the fuel assembly¹⁾

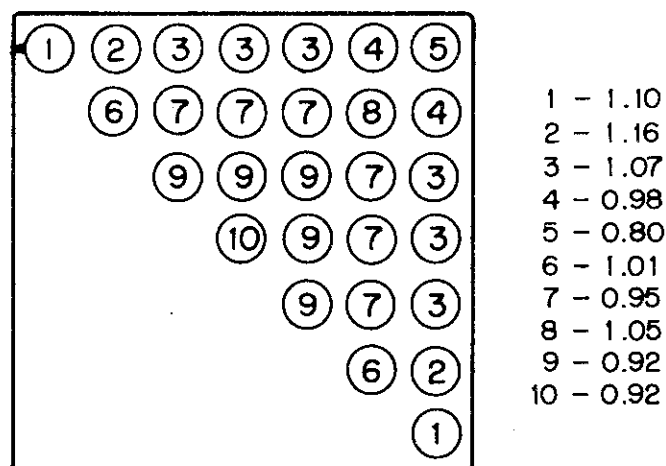


Fig. 5-2 Fuel rod grouping and heat generation rate of each group rod relative to average

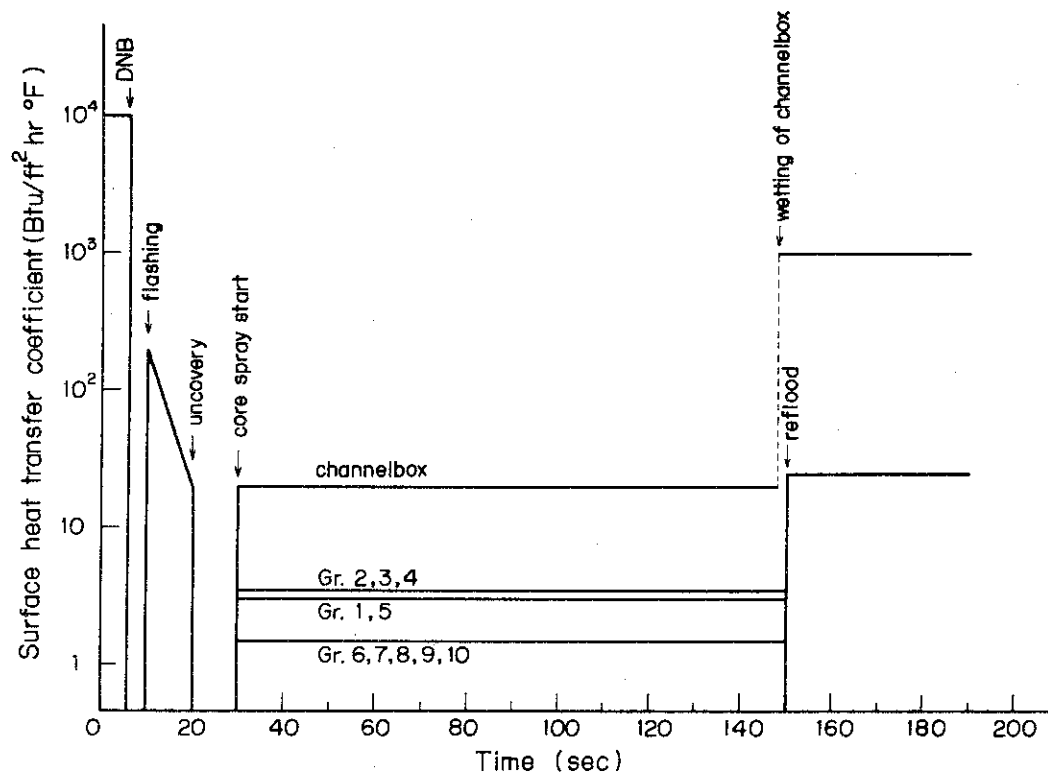
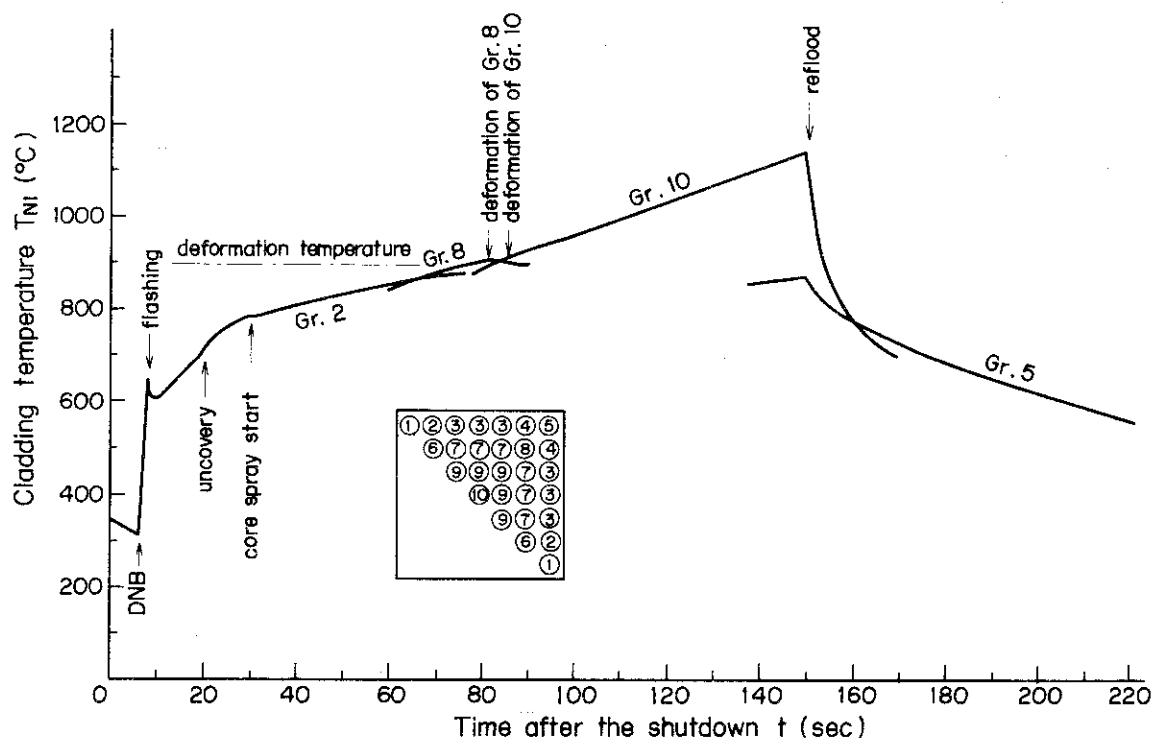


Fig.5-3 Surface heat transfer coefficient for the sample run

Fig.5-4 The results of the sample calculation¹⁾

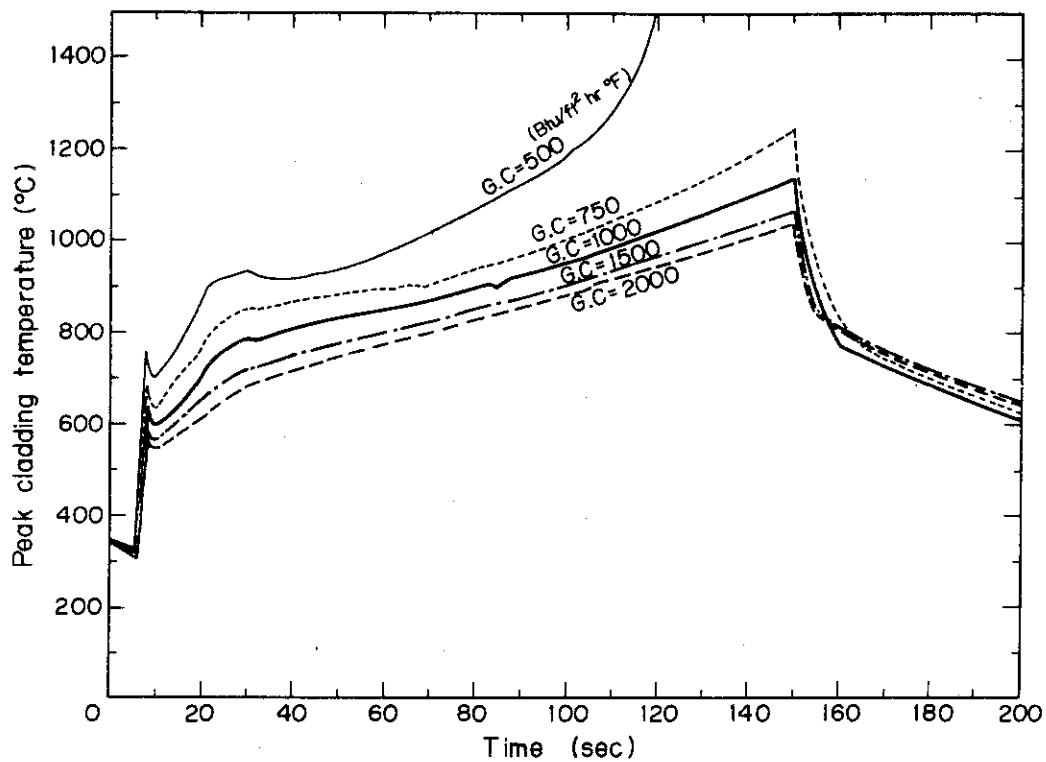


Fig. 5-5 Sensitivity for gap conductance before deformation

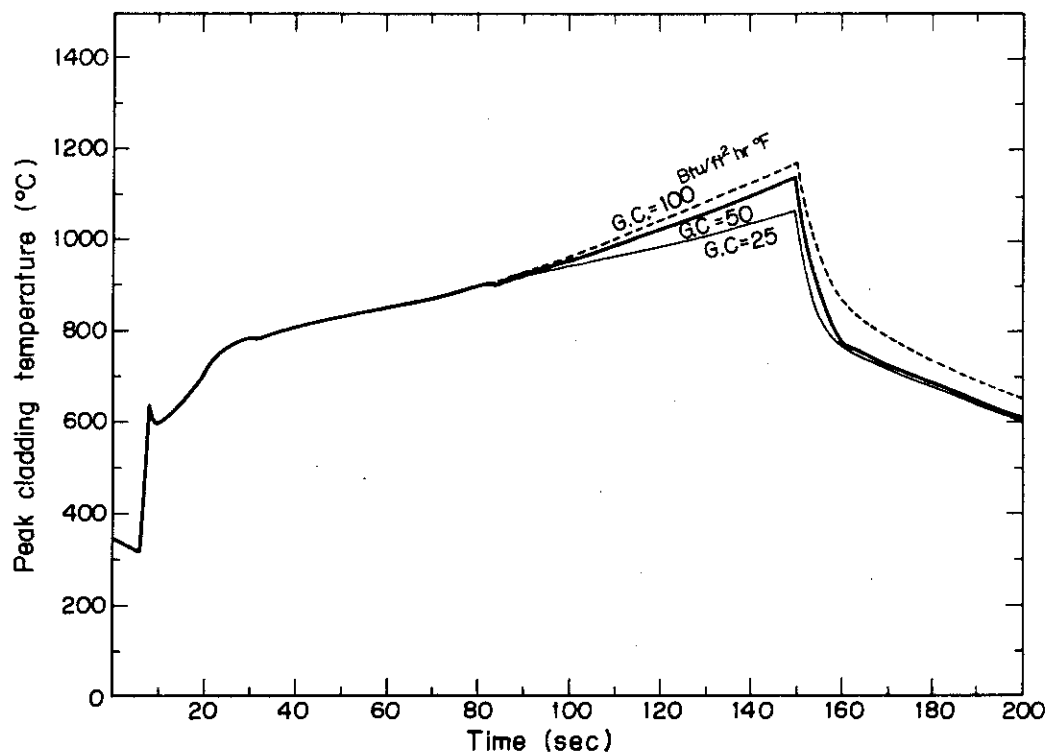


Fig. 5-6 Sensitivity for gap conductance after deformation

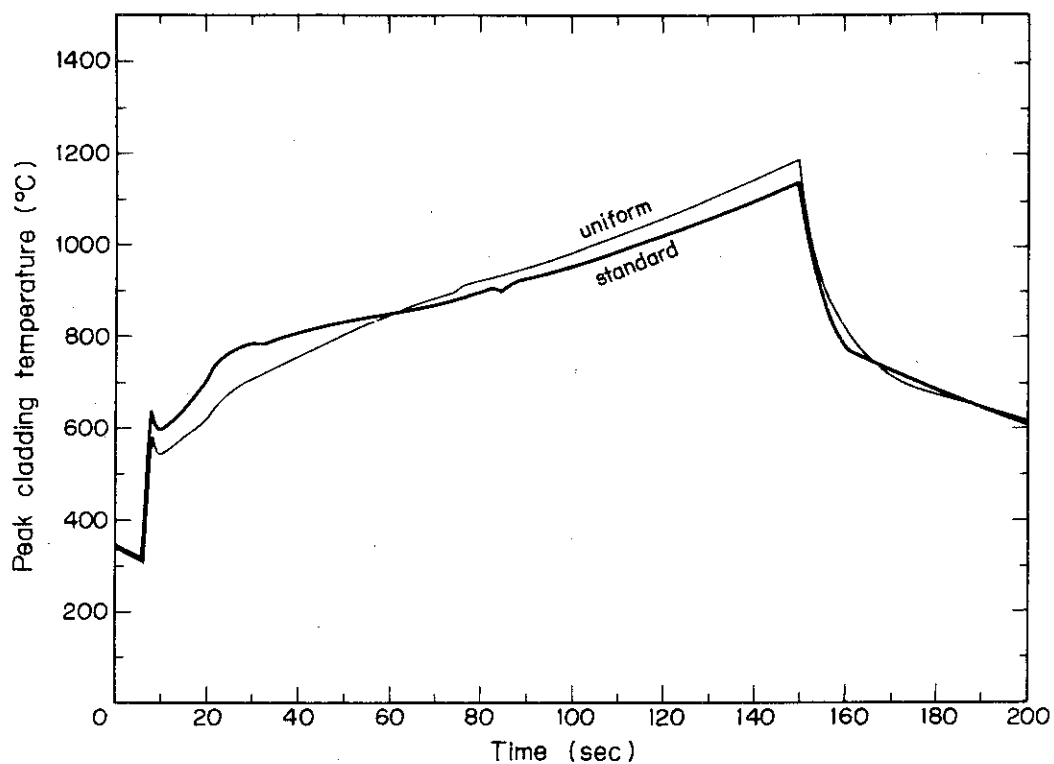


Fig.5-7 Sensitivity for heat generation distribution

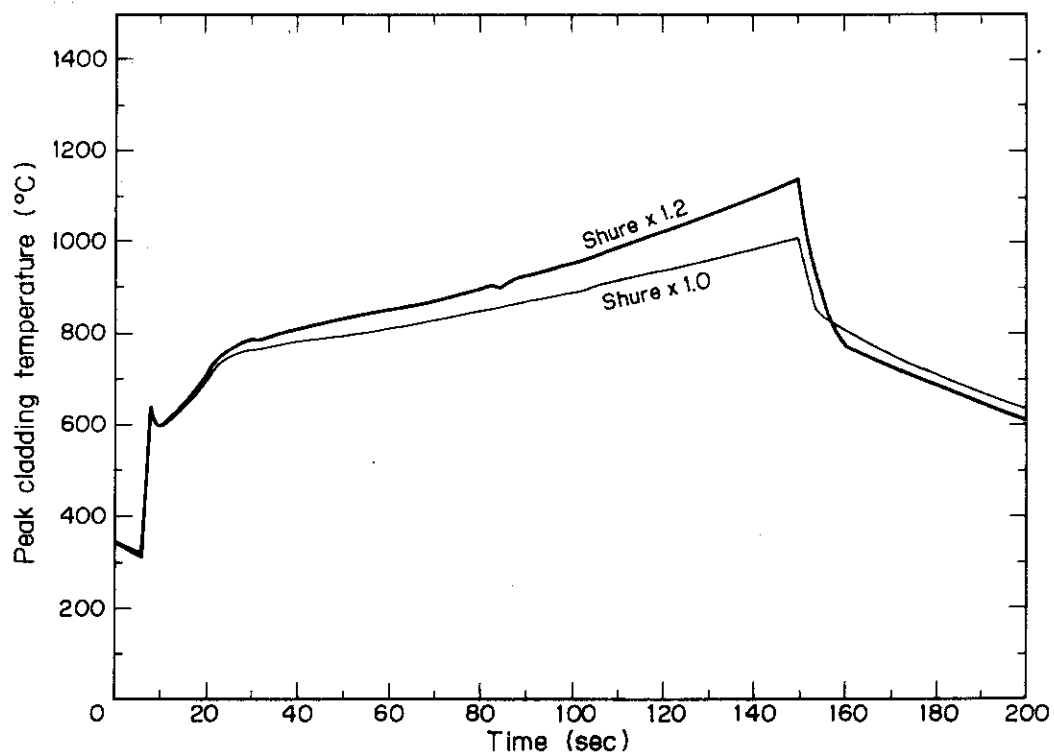


Fig.5-8 Sensitivity for fission product decay heat

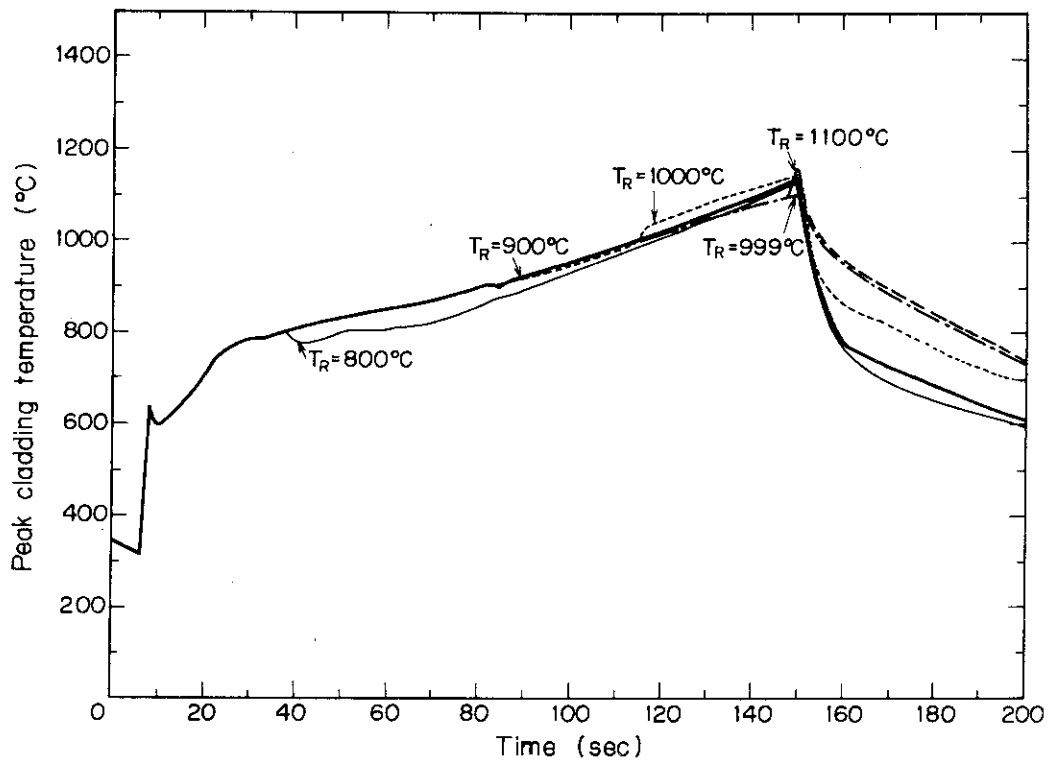


Fig.5-9 Sensitivity for deformation temperature

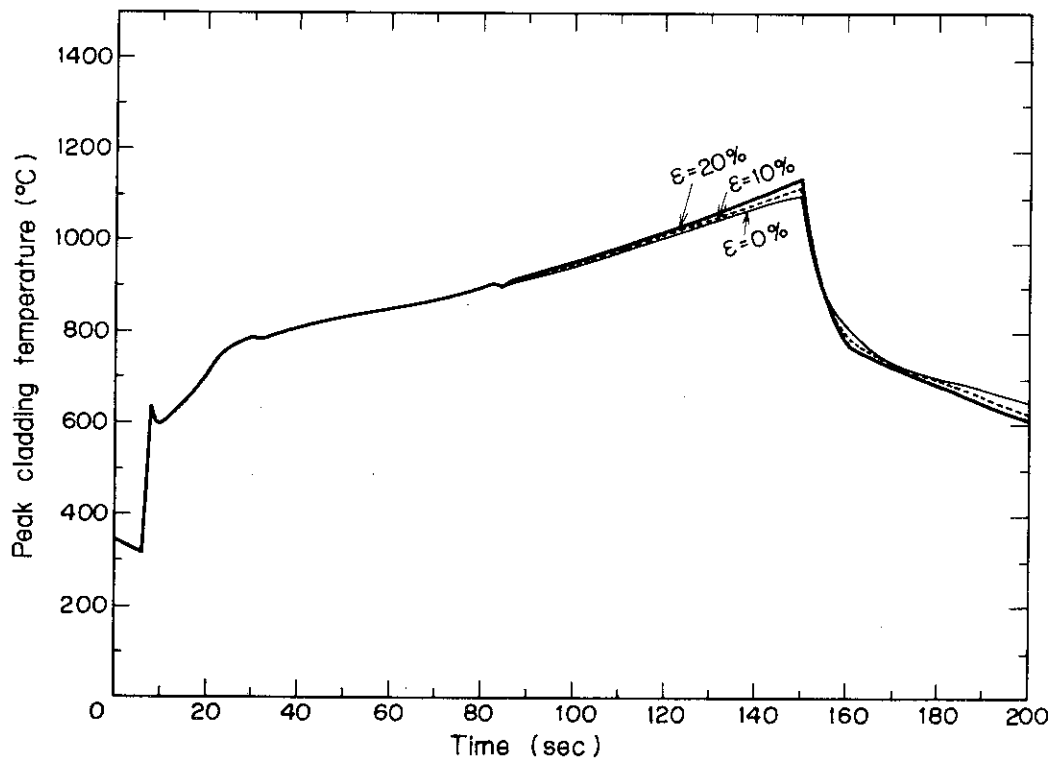


Fig.5-10 Sensitivity for strain after rupture, assuming that gap conductance does not depend on strain

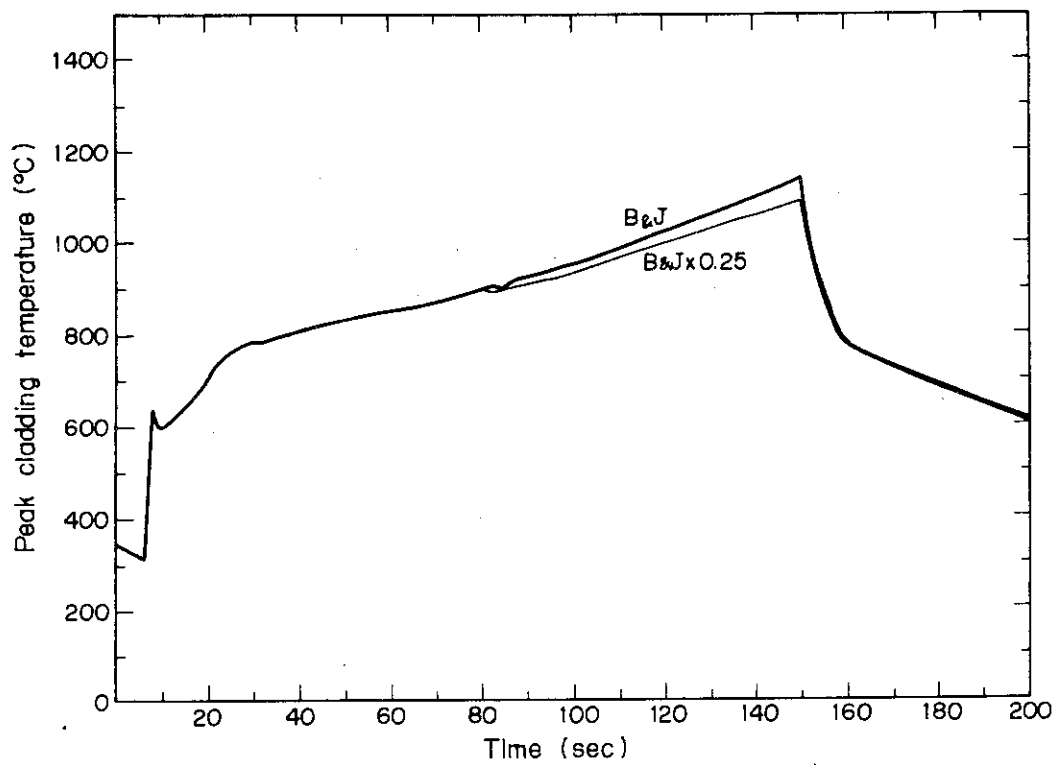


Fig.5-11 Sensitivity for zirconium-water reaction velocity at cladding inner surface.

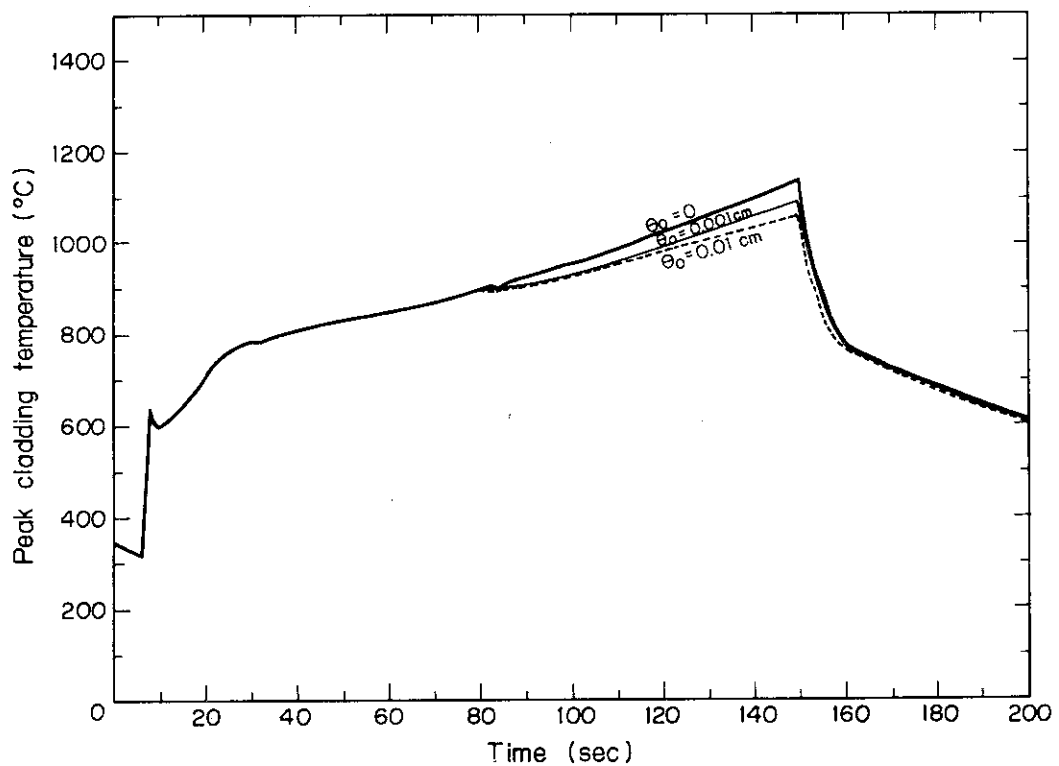


Fig.5-12 Sensitivity for initial oxide thickness at cladding inner surface.

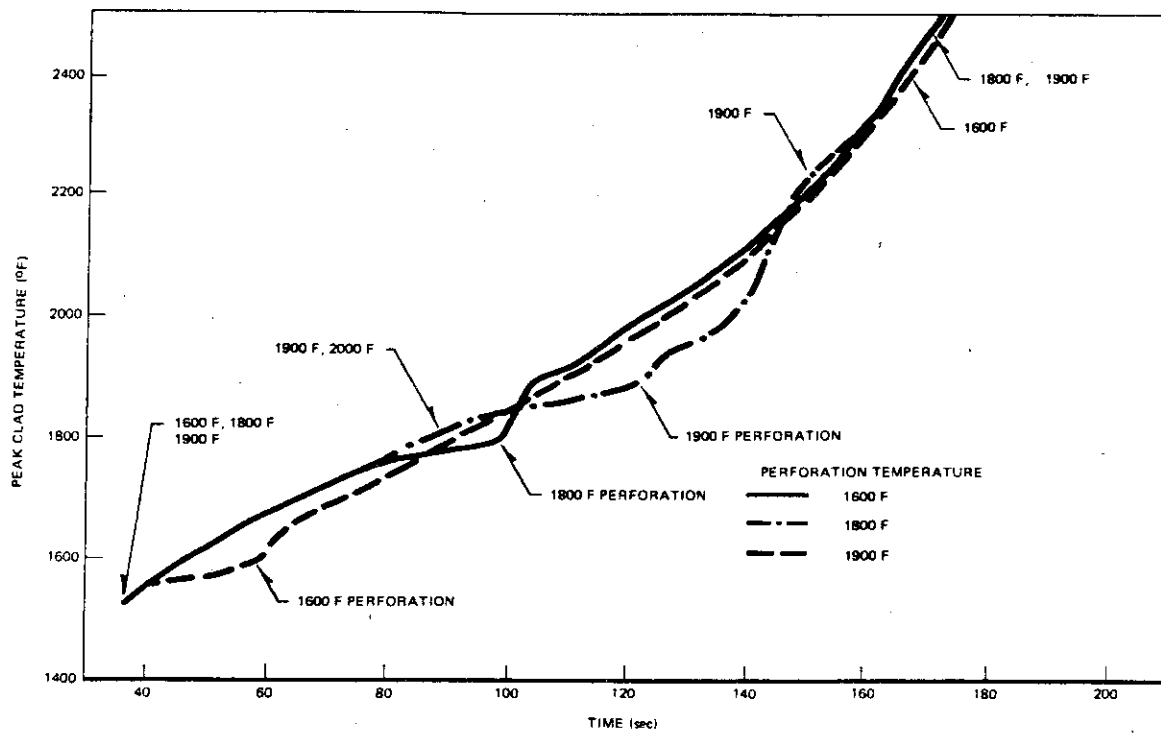


Fig. 5-13 Sensitivity for perforation temperature (1)
(from NEDO-20566)

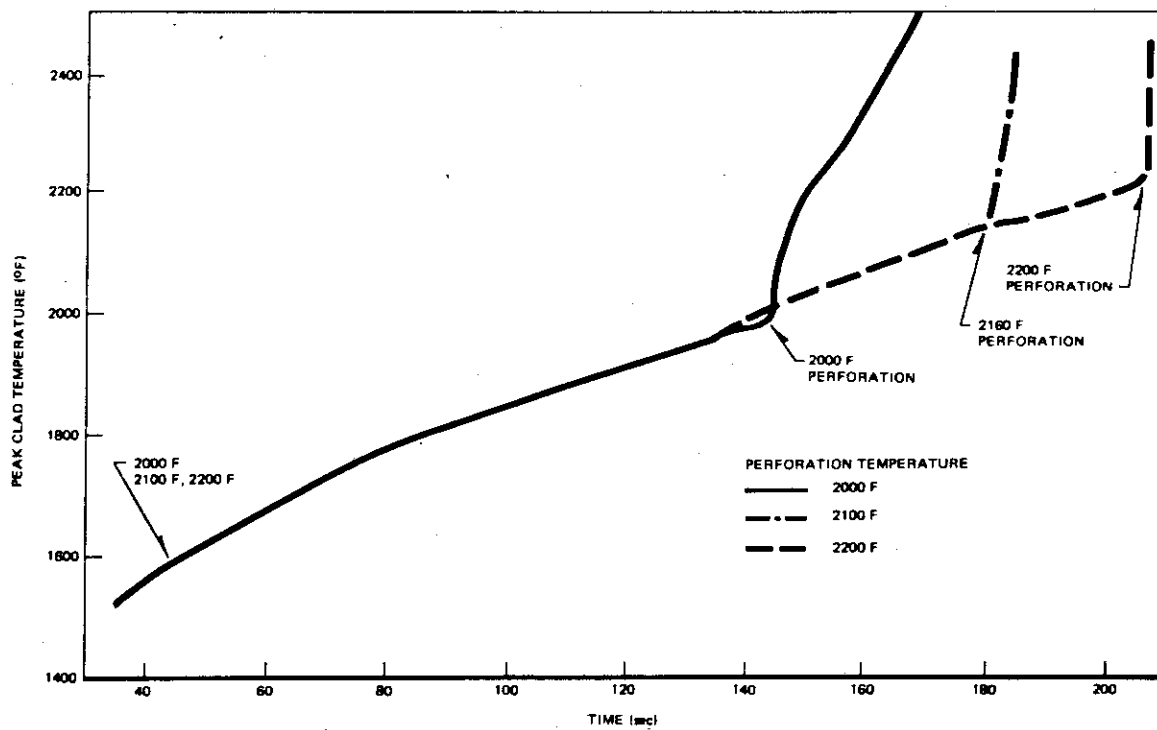


Fig. 5-14 Sensitivity for perforation temperature (2)
(from NEDO-20566)

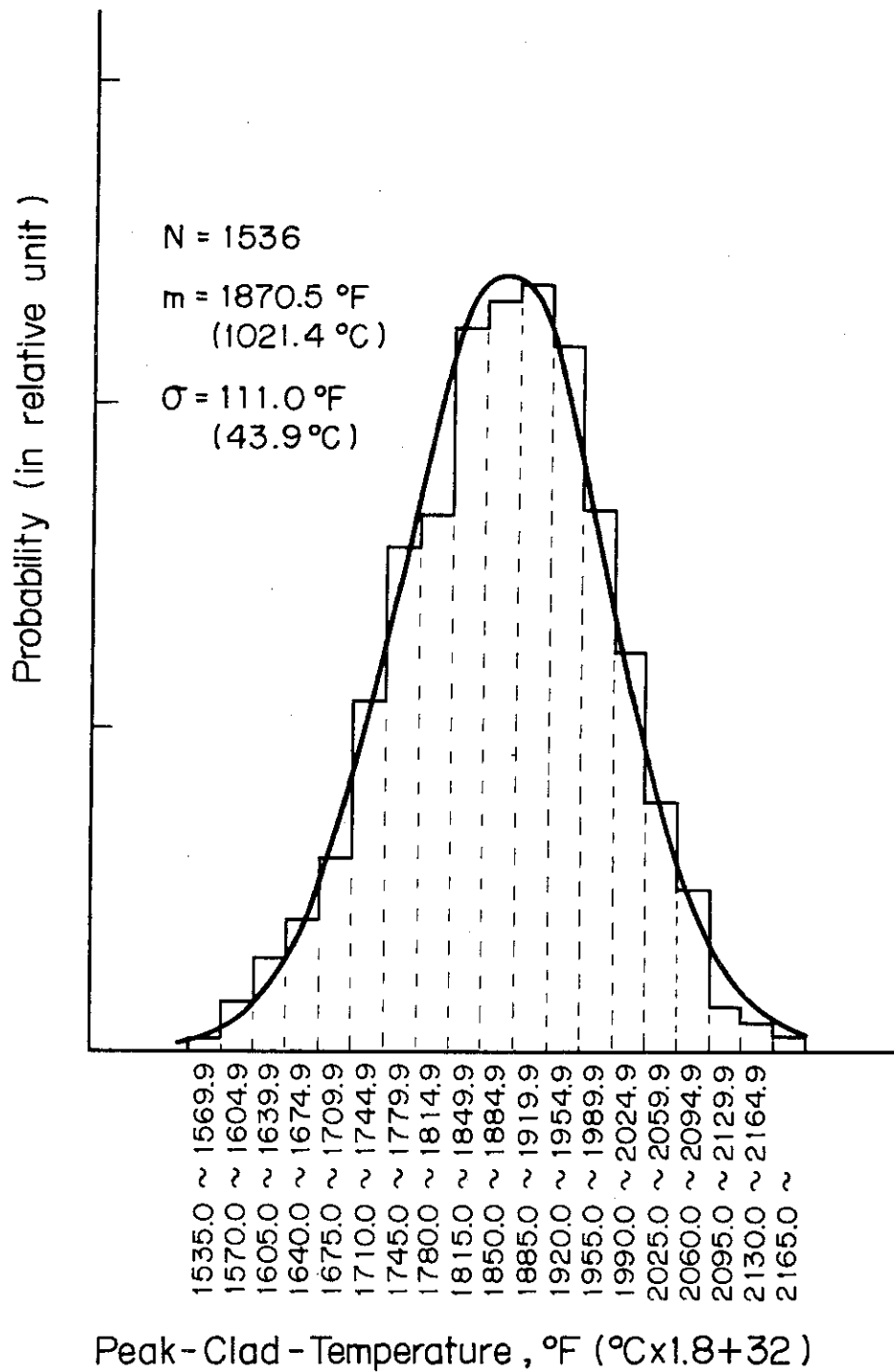


Fig. 5-15 Probability Distribution of PCT with Uniform Input Data Distributions, Calculated by the Table-Calculator-Code of MOXY-EM (Ref.3)

5.2 燃料棒内圧変化

LOCA 時の燃料棒内圧がどのように変化するか調べるために、SCORCH-B2 コード⁽¹⁾に内圧計算プログラムをつけ加えて計算してみた。以下、計算モデルの概要と計算結果とを報告する。

5.2.1 内圧計算モデルの概略

燃料棒内圧 P_i は、事故開始後の F. P. ガスの追加放出を無視すると次式で計算できる。

$$P_i \int \frac{dV}{T+273} = \text{const.} \quad (1)$$

ここで、

T : 各部分のガスの温度 (°C)

V : ガスの占める体積 (cm^3)

であり、積分は、(ペレット内に閉じ込められているガスを除いて) 燃料棒内の全ガス体積についてなされる。

いま、簡単のために、全ガス体積を

(1) F. P. ガス・プレナム

(2) ペレット-被覆管間のギャップ

の2つの部分に分け、各領域内でガスの温度は一定と仮定する。すると、(1)式は次のように書きなおせる。

$$P_i \left(\frac{V_{PL}}{T_{PL} + 273} + \frac{V_G}{T_G + 273} \right) = \text{const} \quad (2)$$

あるいは

$$\frac{P_i}{P_{i0}} = \frac{\frac{V_{PLO}}{T_{PLO} + 273} + \frac{V_{Go}}{T_{Go} + 273}}{\frac{V_{PL}}{T_{PL} + 273} + \frac{V_G}{T_G + 273}} \quad (2)'$$

ここで、

V_{PL} : プレナム部分の体積 (cm^3)

V_G : ギャップ部分の体積 (cm^3)

T_{PL} : プレナム部分のガス温度 (°C)

T_G : ギャップ部分のガス温度 (°C)

であり、また、添字 0 は初期状態の値であることを意味する。これらの各量は、それぞれ次のように計算される。

プレナム体積とギャップ体積

プレナム体積 V_{PL} とギャップ体積 V_G は、それぞれ次式で計算される。(Fig. 5-16 参照)

$$V_{PL} = \pi r_{CI}^2 (Z_C - Z_P) - V_D \quad (3)$$

$$V_G = \pi (r_{CI}^2 - r_{PS}^2) Z_P \quad (4)$$

ここで、

r_{PS} : ペレット半径 (cm)

r_{CI} : 被覆管内半径 (cm)

Z_P : ペレットのスタック長さ (cm)

Z_C : 被覆管の内り長さ (cm)

V_D : プレナム内の構造材 (ばねなど) の体積 (cm^3)

である。各寸法は、熱膨張、弾性変形、塑性変形、ペレットのスウェリングなどによって定まるが、このうち熱膨張だけを取り上げることになると、各寸法は次のように計算される。

$$r_{PS} = r_{PS*} [1 + \alpha_P (T_P - T_*)] \quad (5)$$

$$r_{CI} = r_{CI*} [1 + \alpha_C (T_C - T_*)] \quad (6)$$

$$Z_P = Z_{P*} [1 + \alpha_P (T_P - T_*)] \quad (7)$$

$$Z_C = Z_{C*} [1 + \alpha_C (T_C - T_*)] \quad (8)$$

ここで、

T_* : 室温 ($^{\circ}\text{C}$)

α_P : ペレットの熱膨張率 ($1/^{\circ}\text{C}$)

α_C : 被覆材の熱膨張率 ($1/^{\circ}\text{C}$)

T_P : ペレットの体積平均温度 ($^{\circ}\text{C}$)

T_C : 被覆温度 ($^{\circ}\text{C}$)

であり、添字*は室温での値であることを意味する。 T_P , T_C は、SCORCH-B2 の計算結果から与えられる。(ただし、ガス・ギャップ全体を1領域と見なしているので、SCORCH-B2 の計算は、軸方向平均出力についてなされなければならない。) α_P , α_C は、室温から T_P , T_C までの平均の熱膨張率であるから、Fig. 5-17, Fig. 5-18 (ともに参考資料4から転写) のデータから、次のように計算できる。

$$\alpha_P = 5.8 \times 10^{-6} + 5.8 \times 10^{-9} \frac{T_* + T_P}{2} \quad (9)$$

$$\alpha_C = 5.62 \times 10^{-6} + 3.162 \times 10^{-9} \frac{T_* + T_C}{2} \quad (10)$$

プレナム・ガスの温度

プレナム・ガスの温度 T_{PL} は次式で与える。

$$T_{PL} = T_B + \Delta T_{PL} \quad (11)$$

ここで、

T_B : 冷却材温度 (°C)

ΔT_{PL} : 冷却材温度とプレナム・ガス温度との差 (°C)

である。 T_B は、SCORCH-B2 に対する入力データとして、時間依存で与えられている。

ΔT_{PL} は定常状態で約 10°C とされている。

ギャップ・ガスの温度

ギャップ・ガスの温度 T_G は次式で計算される。

$$T_G = \frac{1}{2} (T_{PS} + T_{CI}) \quad (12)$$

ここで、

T_{PS} : ペレット表面温度 (°C)

T_{CI} : 被覆管内面温度 (°C)

である。 T_{PS} 、 T_{CI} は SCORCH-B2 コードにより計算される。

5.2.2 内圧計算結果

上述の計算モデルを SCORCH-B2 に組み込んで、LOCA 時の燃料棒内圧の変化を計算した。計算条件は次のとおりである。

SCORCH-B2 オリジナル・プログラムの計算条件

SCORCH-B2 マニュアル⁽¹⁾記載のサンプル計算と次の点だけ変えた。

- ・ 燃料集合体線出力 (燃料集合体単位長当りの出力) を $5500 \text{ cal/cm} \cdot \text{sec}$ から $3900 \text{ cal/cm} \cdot \text{sec}$ に落とした。これは、マニュアル記載の計算が最高出力高さに注目しているのに対し、今回の計算は軸方向平均出力に対してなされなければならないからである。

内圧計算プログラムの計算条件

内圧計算に必要な入力データは次のように選定した。

ペレット半径	$r_{PS*} = 0.605 (\text{cm})$
被覆管内半径	$r_{CI*} = 0.621 (\text{cm})$
ペレット・スタック長さ	$Z_{P*} = 366.0 (\text{cm})$
被覆管内のり長さ	$Z_{C*} = 407.0 (\text{cm})$
プレナム内構造材体積	$V_D = 5 (\text{cm}^3)$
室温	$T_* = 20 (\text{°C})$
冷却材温度とプレナム・ ガス温度との差	$\Delta T_{PL} = 10 (\text{°C})$

このときの計算結果(②' 式の値)はFig. 5-19中の太線である。なお、各パラメータの影響を調べるために、次の感度解析計算も同時に行った。(感度解析しない入力変数はすべて上記の標準ケースの値である)

- (1) プレナム内のガスの温度は冷却材温度に等しいと仮定した場合の計算。すなわち、 $\Delta T_{PL} = 0$ としたときの計算。
- (2) ある時間帯で ΔT_{PL} が50℃に変化したときの計算。すなわち、 $0 \leq t < t_1$ もしくは $t_2 < t$ のとき $\Delta T_{PL} = 10$ 、 $t_1 \leq t \leq t_2$ のとき $\Delta T_{PL} = 50$ の計算。実際には $\Delta T_{PL} = 10$ のときは標準ケースの結果と一致するので、 $t=0$ のとき $\Delta T_{PL} = 10$ 、 $t > 0$ のとき $\Delta T_{PL} = 50$ として計算した。この計算は、プレナム・ガスの温度変化が流体の温度変化に追従しない場合(たとえばプレナム部の被覆管外面で断熱と仮定する場合)の影響を調べるものである。
- (3) ペレットと被覆管の熱膨張を無視した計算。すなわち、 $\alpha_P = \alpha_C = 0$ の場合の計算。
- (4) ギャップ部分の体積は十分小さいとして無視した計算。すなわち、 $V_G = 0$ の場合の計算。実際には、常温で $V_G = 23 \text{ cm}^3$ 、 $V_{PL} = 45 \text{ cm}^3$ 、標準ケースの定常状態で $V_G = 19 \text{ cm}^3$ 、 $V_{PL} = 43 \text{ cm}^3$ となっている。
- (5) $\Delta T_{PL} = 0$ かつ $\alpha_P = \alpha_C = 0$ かつ $V_G = 0$ としたときの計算。この計算は、後に述べるように、容量の変化しない箱の中に入っているガスが、外部の温度とただちに同じ温度になるとしたときの圧力変化を計算するためのものである。

これら感度解析結果も、Fig. 5-19に示してある。ただし、(1)の $\Delta T_{PL} = 0$ としたときの結果は標準ケースとはほぼ重なるので書き込んでいない。なお、事故開始後30秒と150秒のときの初期値に対する相対内圧 P_i/P_o の値をまとめると、Table 5-3のようになる。また、Fig. 5-19には、内圧と温度との依存性を見るために、流体温度とギャップ・ガスの温度履歴も示してある。

5.2.3 内圧計算の結論と考察

以上の内圧計算の結果をまとめると次のようになる。

- (1) 燃料棒内圧は、プレナム・ガスの温度に極めて強く依存する。これは、燃料棒プレナムの体積が、全ガス体積の70%前後を占めるからである。プレナム温度は、事故開始後冷却材飽和温度の低下に伴って下がるので、燃料棒内圧もそれに伴って低下する。概算としては、前述の(5)番目の感度解析計算($\Delta T_{PL} = 0$ かつ $\alpha_P = \alpha_C = 0$ かつ $V_G = 0$)に示されたように、密閉されたプレナム・ガスが外部温度と同じになると仮定すると、次の計算式で内圧変化を計算できる。

$$\frac{P_i}{P_{i0}} = \frac{T_{PL} + 273}{T_{PLO} + 273} = \frac{T_B + 273}{T_{B0} + 273} \quad (13)$$

$T_{B0} = 287^\circ\text{C}$, $T_B = 135^\circ\text{C}$ とすると, (13)式から $(P_i/P_{i0}) = 0.73$ となる。これが, (5)番目の感度解析計算の30秒以後の値である。

(2) プレナム・ガスの温度が常に冷却材温度より ΔT_{PL} だけ高いとすると,

$$\frac{P_i}{P_{i0}} = \frac{T_{PL} + 273}{T_{PLO} + 273} = \frac{T_B + \Delta T_{PL} + 273}{T_{B0} + \Delta T_{PL} + 273} \quad (14)$$

となる。 $T_{B0} = 287^\circ\text{C}$, $T_B = 135^\circ\text{C}$, $\Delta T_{PL} = 10^\circ\text{C}$ としたとき, (14)式から $(P_i/P_{i0}) = 0.73$ となる。すなわち, プレナム温度が冷却材温度より多少高いかどうかは, 圧力の挙動に影響しない。このことは, (1)の感度解析計算 ($\Delta T_{PL} = 0$) と標準計算 ($\Delta T_{PL} = 10$) の間にはほとんど差がついていないことによって裏づけられている。

(3) 以上, 最も単純なモデルでプレナム・ガスの内圧変化のおよその挙動を調べた。このモデルの誤差は(以下に述べるような正負の誤差が打ち消し合った結果であるが)10%以内である。実際問題としては, 燃焼の進んだ燃料について初期内圧を10%以内の誤差で押さえるのは極めて困難であると思われる (Fig. 5-20 参照) ので, 事故時の燃料棒内圧の絶対値を知りたい問題では, (13)式程度のモデルで十分であろう。

(4) 初期内圧が十分正確にわかったとして, 燃料棒内圧をより正確に求めたい場合, 次の3つの項目が比較的大きな影響を与えるものと思われる。

- a. 燃料棒内のギャップに異なる温度のガスがあること。
- b. ペレットと被覆管の熱膨張などにより, プレナムおよびギャップの体積が変化すること。
- c. プレナム・ガスの温度が, 冷却材温度変化にすぐには追随しないかも知れないこと。すなわち, ΔT_{PL} が過渡期間中一定ではないこと。

以下, これらの影響について順次述べていく。

(5) ギャップのガスの影響を考えると, ギャップの温度は過渡期間中上昇する方向にあり, これが, 燃料棒内圧を高める方向に働く。Fig. 5-19 中に示されるように, $V_G = 0$ のときの計算に比べ, 標準計算の結果は事故が進むにつれて高い内圧を記録している。

(6) 次に, 熱膨張について考える。定常状態ではペレットがかなり高温になっているため, ペレットは縦横に大きくなっており, プレナム体積もギャップ体積も小さくなっている。事故開始後, ペレットの平均温度は下がるので, その結果プレナムとギャップの体積が広がり, 内圧を下げる方向になる。Fig. 5-19 中に示すように, $\alpha_P = \alpha_G = 0$ のときの計算に比べ, 標準計算の結果は常に低い内圧を記録している。

(7) 次に、プレナム・ガスの温度応答の影響について考える。GE社の詳細なプレナム・ガス温度計算モデル⁽²⁾によれば、Fig. 5-21に示すように、プレナム部の被覆管表面で断燃になったりする影響などで、冷却材温度とプレナム・ガス温度の差が最大70℃ほどになっている。Fig. 5-19によれば、プレナム・ガスの温度が、過渡期間の途中で冷却材温度よりも50℃高くなったとき、標準計算（いつでも $\Delta T_{PL} = 10^\circ\text{C}$ ）に比べて、圧力が約8%高くなる。

以上が、LOCA 時の熱料棒の内圧変化計算の結論である。なお、参考資料として、GE社の内圧計算の例⁽²⁾をFig. 5-22に示す。Fig. 5-22の結果も、冷却材温度が約550°F（288℃）から約270°F（132℃）に変化したとき、燃料棒内圧が最初の約72%に低下することを示しており、今回の計算結果と酷似した結果を示している。なお、図中に見られるように、差圧は時間と共に上昇している。

Table 5.3 Results of sensitivity studies about fuel rod internal pressure

internal pressure assumption	t=30sec		t=150sec	
	P_i/P_{i0}	rate to standard	P_i/P_{i0}	rate to standard
Standard run	0.75	-	0.80	-
(1) $\Delta T_{PL}=0$	0.75	0%	0.79	-1%
(2) $\Delta T_{PL}=50$ during $t \neq 0$	0.81	+8%	0.86	+8%
(3) $\alpha_p = \alpha_c = 0$	0.82	+9%	0.87	+9%
(4) $V_G=0$	0.70	-7%	0.70	-13%
(5) $\Delta T_{PL}=0$, $\alpha_p = \alpha_c = 0$ and $V_G=0$	0.73	-3%	0.73	-9%

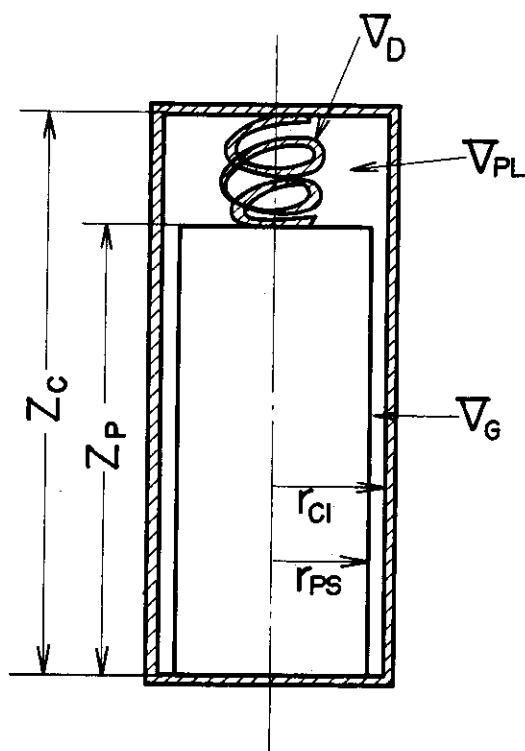


Fig.5-16 Volume Calculation Model

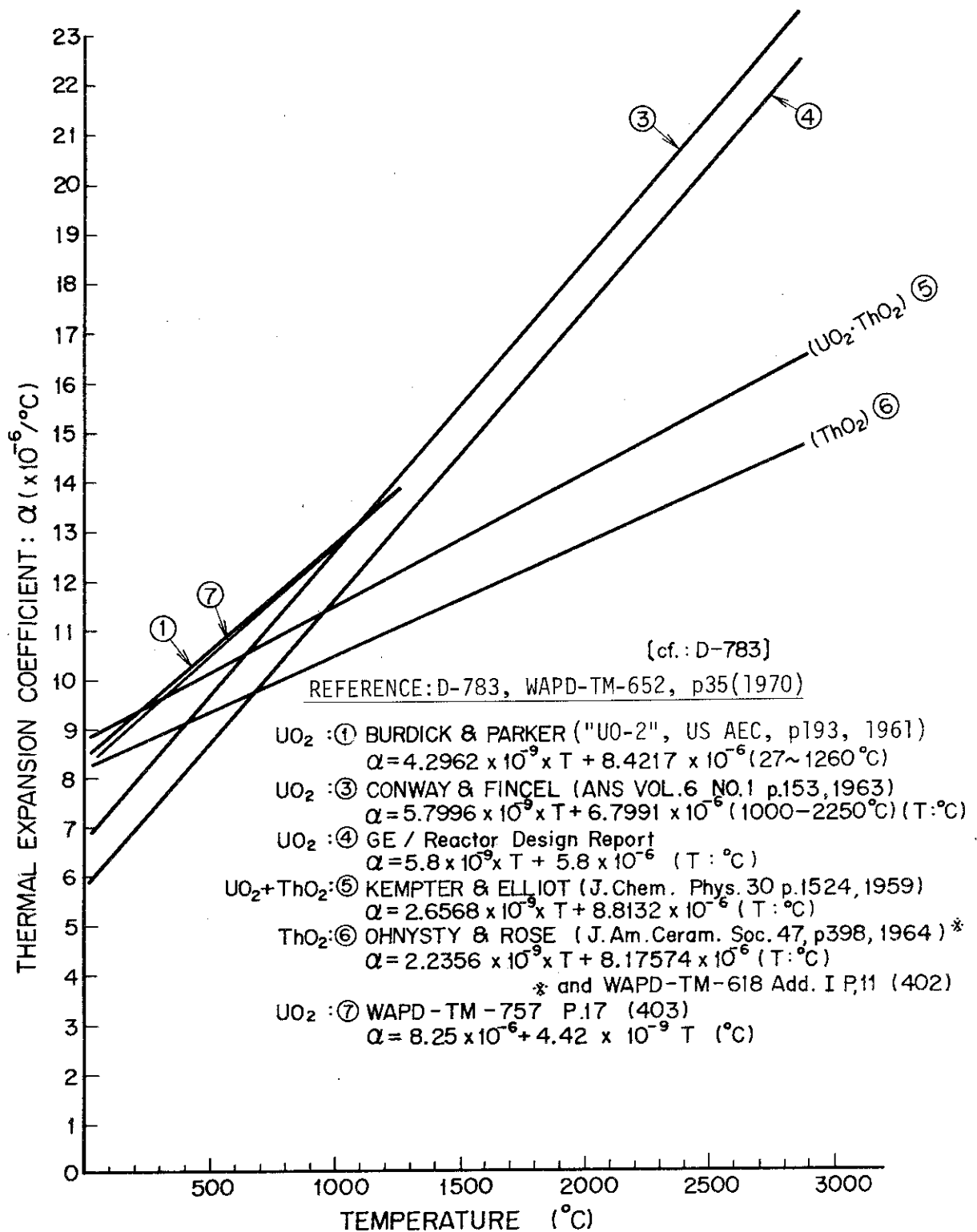


Fig.5-17 Thermal Expansion Coefficient of UO₂
and ThO₂⁴⁾

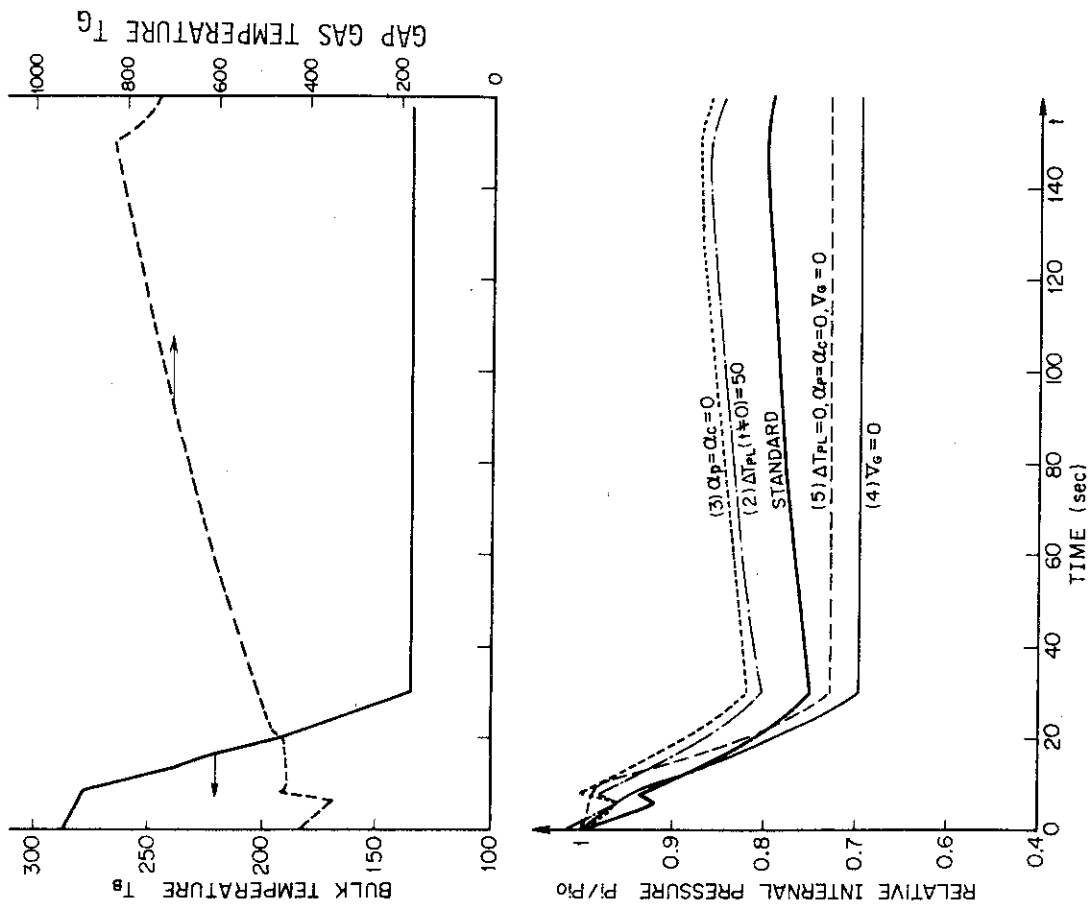


Fig. 5-19 Fuel Rod Internal Pressure Response

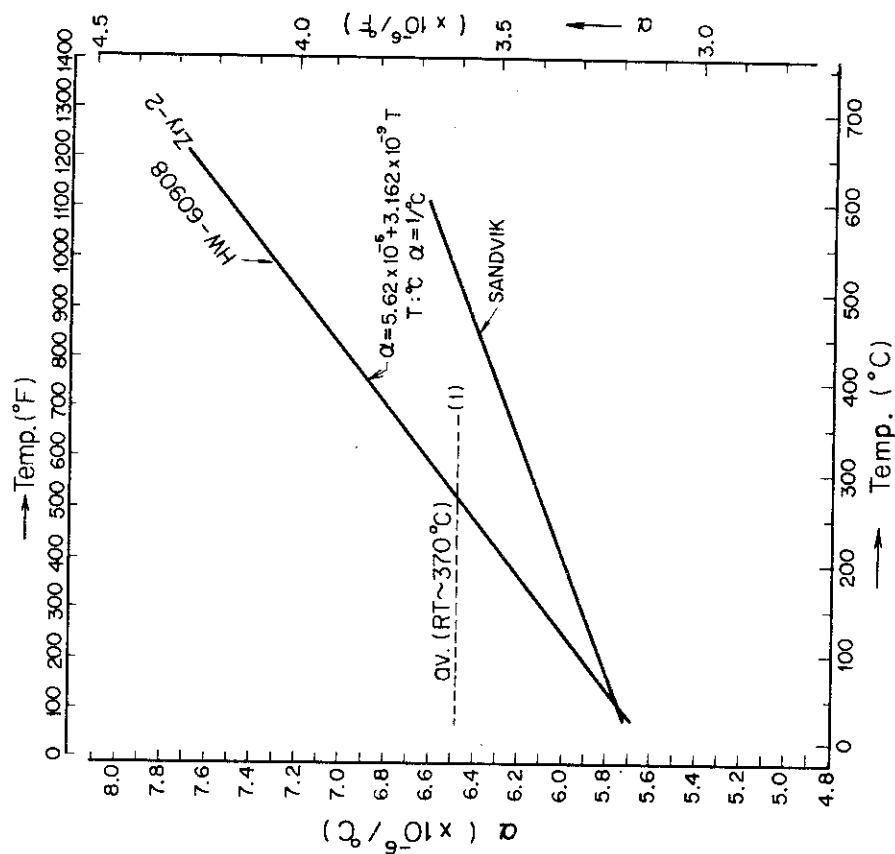


Fig. 5-18 Thermal Expansion Coefficient of zirconium alloys⁴⁾

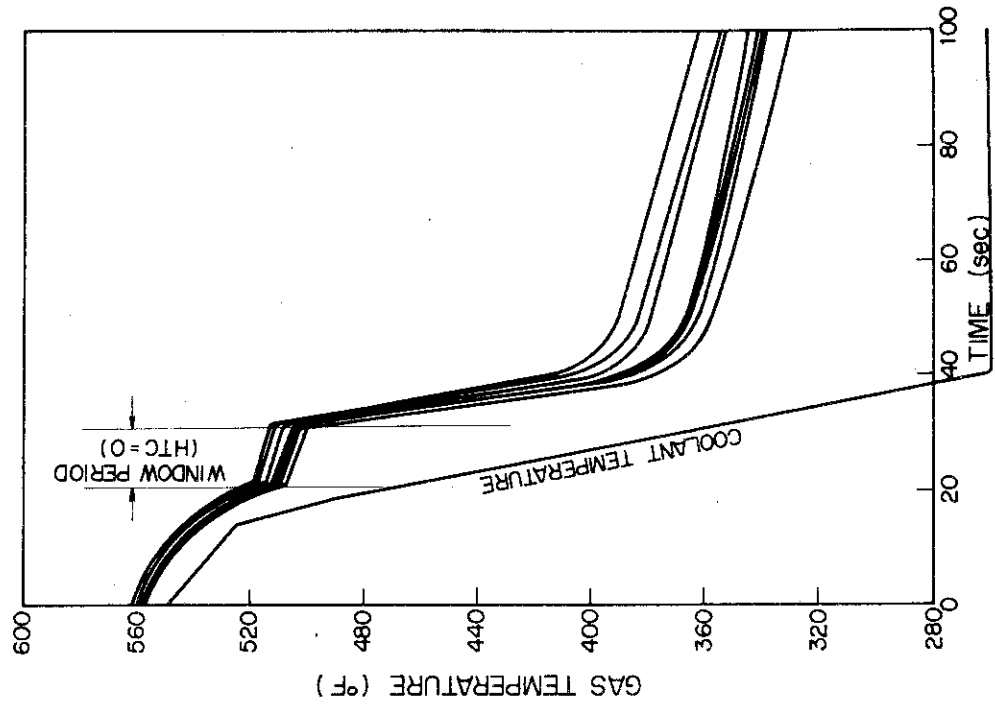


Fig. 5-21 Gas temperature versus time for eight plenum designs used in jet pump plant fuel (All designs have getter)(2)

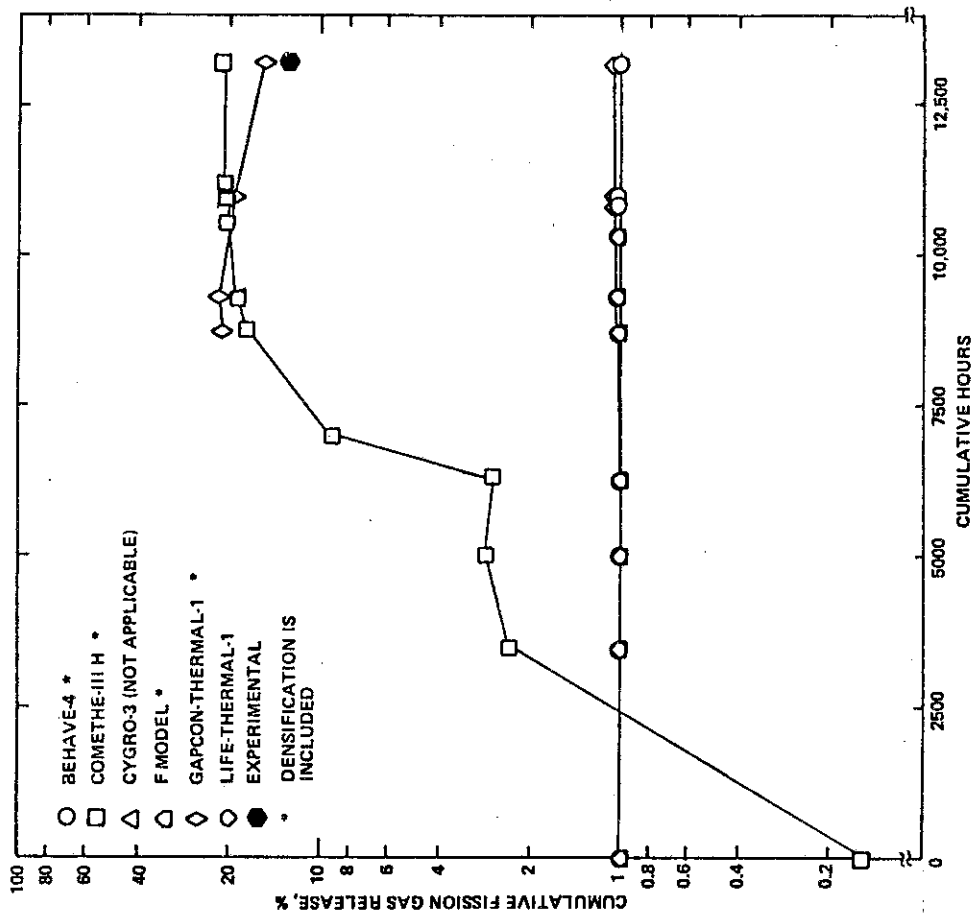
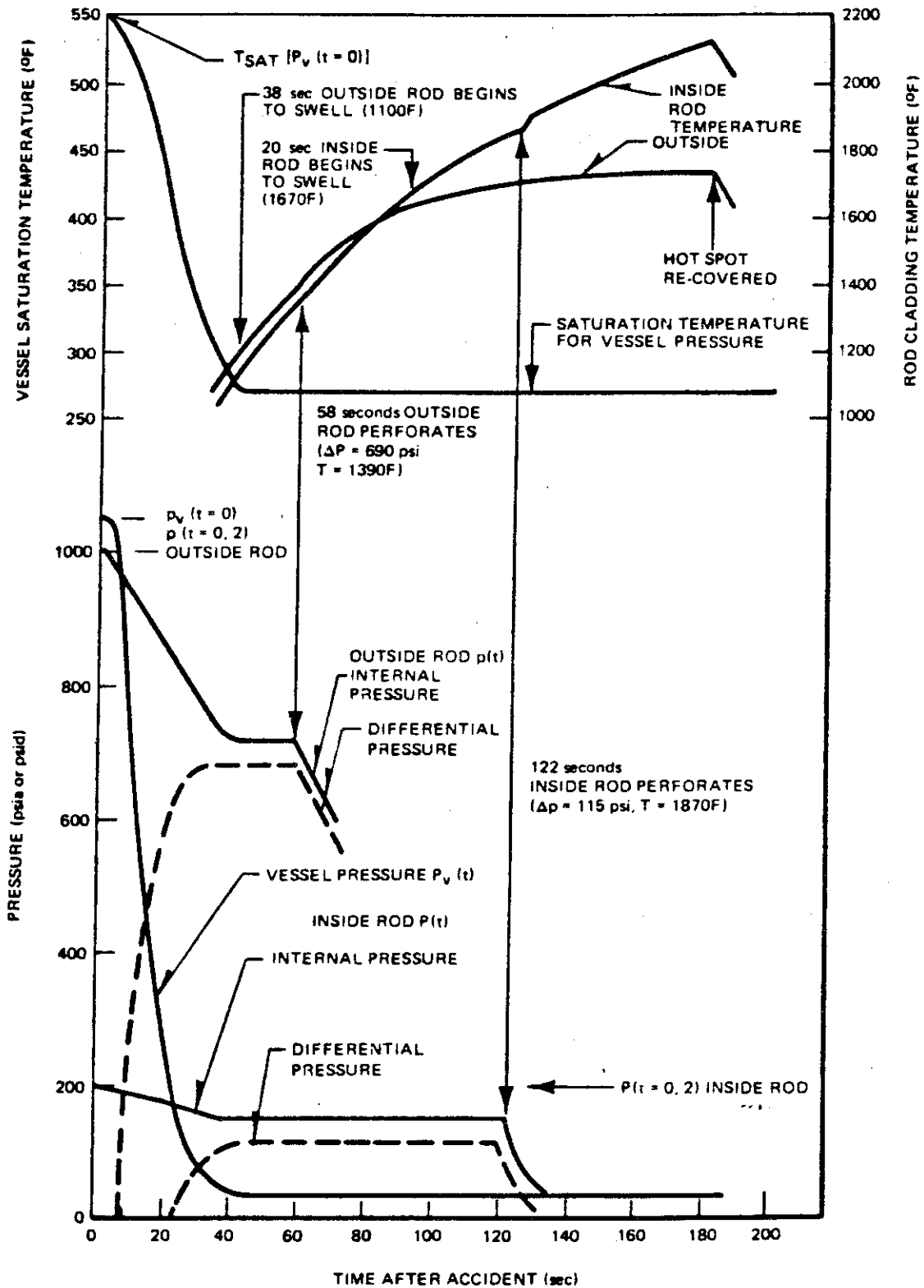


Fig. 5-20 JBP005 rod - Cumulative fission gas release vs time⁵⁾

Fig. 5-22 Sample LOCA Calculation²⁾

5.3 参 考 文 献

- (1) 阿部清治, 佐藤一男, "SCORCH-B2: LOCA時の原子炉炉心ヒートアップのシミュレーション・コード, BWR用, 第2版", 1976年8月(JAERI-M 6678)
- (2) "General Electric Company Analytical Model for Loss-of-Coolant Analysis in Accordance with 10CER50 Appendix K", Jan. 1976 (NEDO-20566)
- (3) 下桶敬則, 松本 潔, 武 弘司, "BWR・LOCA時の燃料棒被覆管最高温度の統計的研究", 原子力学会予稿集, Mar. 1977
- (4) 森島淳好, 他: "燃料設計に必要な物性値及び計算図表(改訂第2版)" 1972年7月(JAERI-M 4881)
- (5) J. T. A. Roberts, F. E. Gelhaus and E. L. Zebroski, "Characterization of Normal Fuel Rod Behavior in Light Water Reactors", Sep. 1976 (CSNI-report)