

JAERI-M  
8081

滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ  
被覆管の脆化

1979年2月

上塚 寛・古田 照夫・川崎 了

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.

滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ被覆管の脆化

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

上塚 寛・古田照夫・川崎 了

(1979年1月16日受理)

LOCA時に燃料被覆管が破裂した場合、被覆管内面が酸化することによって生じる脆化挙動を解明するためにLOCA安全解析における燃料被覆管表面温度の計算例に合わせて、被覆管内面酸化時の水蒸気状態を模擬した滞留水蒸気中酸化実験を行った。その結果、ジルカロイ被覆管が脆化する主因は被覆管中に吸収された水素による水素脆化であることが明らかになった。又、100°Cにおけるリング圧縮試験で水素を約500 wt. ppm以上吸収したジルカロイ被覆管はすべて脆化していることが判明した。酸化後の金属組織が $\alpha$ 相当軸晶である被覆管は吸収水素量が2000 wt. ppm以上であっても300°Cリング圧縮試験で延性を示したが、針状prior- $\beta$ 組織である被覆管は吸収水素量が1000 wt. ppm程度であっても300°C圧縮試験で脆性であった。

Zircaloy Cladding Embrittlement due to Steam Oxidation in Stagnant  
Steam Condition

Hiroshi UETSUKA, Teruo FURUTA, Satoru KAWASAKI

Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 16, 1979)

In connection with the zircaloy cladding embrittlement due to inner surface oxidation during a LOCA, ring-like zircaloy-4 specimens were oxidized in stagnant steam under a calculated LOCA transient temperature history and the ductility loss was measured.

It was found that the principal factor influencing the embrittlement behavior of zircaloy-4 oxidized in stagnant steam is the absorbed hydrogen.

Ring compression test at 100°C showed that ductility of the specimens decreases rapidly with increase of the hydrogen content; the specimens with more than about 500 wt.ppm of absorbed hydrogen are brittle.

Ring compression test at 300°C showed that the specimens with about 1000 wt.ppm of absorbed hydrogen oxidized in stagnant steam at above 1000°C are brittle.

Keywords: LOCA, Temperature Transient, Fuel Cladding, Zircaloy-4, Steam Oxidation, Inner Surface Oxidation, Embrittlement, Hydrogen Content

## 目 次

1. 緒 言	1
2. 実 験	2
2.1 試料及び反応装置	2
2.2 試験法	2
2.3 反応後試験	2
3. 結 果	3
4. 考 察	5
4.1 延性評価	5
4.2 酸化による脆化	5
4.3 滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ脆化の原因	7
4.4 今後の問題点	10
5. 結 論	12
謝 辞	12
References	13

## CONTENTS

1.	Abstract	-----	1
2.	Experiments	-----	2
2.1	Specimens and Oxidation Apparatus	-----	2
2.2	Experimental Method	-----	2
2.3	Experiments after Oxidation	-----	2
3.	Results	-----	3
4.	Discussion	-----	5
4.1	Ductility Evaluation	-----	5
4.2	Embrittlement due to Oxidation	-----	5
4.3	Main Cause of Zircaloy Cladding Embrittlement due to Oxidation in Stagnant Steam Condition	-----	7
4.4	Future Subjects	-----	10
5.	Conclusion	-----	12
	Acknowledgement	-----	12
	References	-----	13

## 1. 緒 言

軽水炉の冷却材喪失事故時には、燃料被覆管は高温水蒸気雰囲気のもとで酸化し、機械的性質とりわけ延性が劣化する。原子炉施設周辺に災害が広がるのを防ぐために燃料集合体は炉心冷却の際に冷却可能な形状を保っていなければならない。そのために必要な条件の1つに燃料被覆管がある程度の延性を保持していることがあげられる。

わが国の軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針では冷却材喪失事故時における燃料棒の大破損を防止するために4つの基準が定められている。その中で燃料被覆管温度の計算値の最高値は1200°C以下、そして燃料被覆管の酸化量の計算値はいかなる場所においても酸化前の燃料被覆管厚さの15%以下でなければならないと規定している。又、燃料被覆管が破裂した場合には外面ばかりでなく内面の酸化も考慮しなければならない。この点について安全評価指針では、燃料被覆管の破裂が計算された後は内外表面における反応とも、蒸気の供給不足により制限されることはない<sup>(1)</sup>と仮定しなければならないこと、さらにこのときの被覆管の酸化被膜の厚さの評価については、Baker - Just の式を使用することと述べている。この式はとくに高温においては大きめの反応速度を与えることが指摘されており<sup>(1)</sup>、内面は外面と比べて蒸気の供給量が少いと予想されることを合わせ考えると酸化量に関しては、安全評価指針がより安全側に設定されているものであると言われてきた。しかし、水蒸気流中で行われた被覆管破裂実験で被覆管内面に形成された酸化膜が外面の酸化膜と異なる場合もあり<sup>(2)</sup>、内面に形成される厚い酸化膜<sup>\*</sup>は多孔質なものでジルカロイ中への水素吸収量も多いことが報告<sup>(3)</sup>されている。このような酸化挙動は被覆管内面で水蒸気が滞留状態にあるために起こると考えられる。内面酸化された場合にも被覆管の延性が極端に低下することがなければ、内面酸化現象自体は安全評価上それほど大きな問題とはならないが、950°C以上の温度で同一時間の酸化では、滞留水蒸気中で酸化したジルカロイの延性は水蒸気流中で酸化したものに比べて著しく低下したとも報告<sup>(3)</sup>されている。従って燃料被覆管の延性がLOCA時の内面酸化によってどの程度低下するかを明らかにする必要があると考えられる。本研究では安全解析による冷却材喪失事故時の燃料被覆管温度変化の計算例に合わせて、被覆管内面酸化時の水蒸気状態を模擬した滞留水蒸気中酸化実験を行い、酸化後のジルカロイ被覆管の延性低下を検討した。

---

\* 厚くても多孔質であるため必ずしも酸化量が多いとは限らない。

## 2. 実 験

### 2.1 試料及び反応装置

実験に用いた試料はPWR用ジルカロイ-4被覆管(外径10.75mm,内径9.30mm)である。その組成をTable 1に示す。このジルカロイ-4管を15mmの長さのリング状に切り出し水蒸気反応試験に供した。反応装置の概略図をFig. 1に示す。反応管は透明石英管及び硬質ガラス管で作製したもので、内容積は170 cm<sup>3</sup>である。

### 2.2 試験法

反応試験では、まず反応管内を真空ポンプで真空状態にし、系を閉じた後、水タンクから一定量の蒸留水を反応管内に注入した。注入水の蒸気化を容易にするために、反応管は電熱器で予熱している。水蒸気量の違いによる反応の変化を知るために注入水量は0.2mℓ, 1.0mℓ, 5.0mℓの3通りとした。水蒸気を発生させた後、所定の温度で試片を加熱した。加熱温度及び時間は国内のPWR(3ループ)に関して安全評価用コードで解析されたLOCA時燃料被覆管の温度変化及び燃料被覆管が一定温度以上の高温になっている時間を模擬できるように設定した。ただし、LOCAの初期温度変化には設定条件では対応していない。解析結果の一例と試験条件をFig. 2に示す。図の実線は解析結果で、点線は試験温度条件である。実線のうち高温側はP.C.T. (peak cladding temperature) の変化、低温側は破裂部の温度変化である。この解析の結果では、P.C.T. ノードの最高温度は約1120°C。破裂部の最高温度は約925°Cとなっている。従って、本実験ではこれらの温度条件に合わせて加熱時の最高温度を940°C, 980°C, 1040°C, 1080°C, 1130°Cの5通りとした。加熱時間は試料が375°Cに昇温した時点から計時し、270秒で加熱を停止した。加熱後は反応管を電気炉から離して空冷した。又、890°Cから1194°Cの温度範囲で5分及び10分の等温酸化実験も合わせて行った。

### 2.3 反応後試験

反応試験前後のリング状試片の重量は島津製直示天びんで測定し、重量の増加分を重量増 (Weight Gain) とした。酸化させたリング状試片の延性は100°Cでのリング圧縮試験によって評価した。具体的には、Fig. 3に模式的に示すように、荷重-変位曲線で荷重が最大荷重を経て最大値の80%に低下するまでのクロスヘッドの移動距離( $d_{0.8}$ )で評価した。リング圧縮試験に用いたのはインストロン引張り圧縮試験機で、圧縮速度は20mm/minである。酸化した試片の内部組織を調べるために、試料表面を機械研磨した後、2通りの腐食液で化学研磨して光学顕微鏡で観察した。腐食液は、HF:HNO<sub>3</sub>:グリセリン=2:1:6及びH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>:HNO<sub>3</sub>:HF=30:3:1の容積比の混合液で後者は水素吸収の影響を見るために用いた。



リング圧縮試験でつぶした試片の一部(約5 mm角)をガス分析して吸収水素量を測定した。

### 3. 結 果

今回の実験で得られた結果の一部をTable 2にまとめて示す。Fig. 2で示したように反応実験は5通りの設定温度条件で行ったが、各条件は設定温度の最高値で例えば、Max. Temp. 940°Cのように表記している。又、反応管への注水量は水蒸気量の違いによる反応の変化を観察するために3通りにしたが、注入した水がすべて蒸気化したわけではないので、注水量の違いがそのまま蒸気量の違いとはならない。重量増の値はデータを一般化するために単位面積当りの重量増(mg/cm<sup>2</sup>)とした。Table 2から明らかなように、重量増は設定温度が高温であるものほど大きい。Fig. 4に3種類の注入水量について、加熱温度条件と重量増の関係を示す。注入水量1.0 mlの場合に最高温度が1080°Cと1130°Cでバラツキがあるが、全体としては高温で反応したものほど重量増の値が大きくなり、温度条件が決まれば重量増もほぼ一定の値になる。重量増と100°Cでのリング圧縮試験における変位量の関係をFig. 5に示す。Fig. 4と同様に3通りの注水量について示しているが、いずれの場合にも重量増と変位量の間には明らかに相関が見られる。即ち、変位量は重量増が約2.0 mg/cm<sup>2</sup>までは重量増の値が増加するに従って単調に小さくなるが、重量増がそれ以上の値になると0.5 mm以下の一定の値になる。リング圧縮試験で変位量が0.5 mm以下の場合には、リング状試片は殆んど塑性変形することなく割れると考えられるので、この結果から、今回の実験条件に対応するような水蒸気酸化では、ジルカロイは酸化重量増が2.0 mg/cm<sup>2</sup>以上になると脆化すると言える。水素分析の結果もTable 2に示す。分析は1試片につき1~3回行った。同一試片で分析値のバラツキがあるが、これは吸収された水素が試片中で不均一に分布しているためである。吸収水素量は高温ほど多くなる。高温であるほど酸化反応が激しく、発生水素量も多くなるので吸収水素量も多くなるのは当然であるように思える。しかし、940°Cと1130°Cの結果を比較すると、重量増、従って発生水素量は3倍足らずであるのに対して、吸収水素量は数十倍にもなっている。このことから、高温で吸収水素量が多くなるのは、発生水素量が多くなるのと同時に水素吸収率も高くなるためである。吸収水素量とリング圧縮試験における変位量の関係をFig. 6に示す。吸収水素量は分析値が2個以上の場合には、その平均値で示してある。重量増とリング圧縮試験における変位量との間に明らかな相関が見られたのと同様、吸収水素量と変位量の間にも強い相関がある。即ち、吸収水素量が約500 wt. ppmまでは、変位量は吸収水素量の増加に伴って減少するが、吸収量がそれ以上になると0.5 mm以下の小さな値となる。従ってこの結果から、水蒸気酸化のもとで吸収水素量が約500 wt. ppmを超えるとジルカロイは脆化すると思われる。Fig. 7にリング圧縮試験の試験温度が異なる場合の重量増と変位量との間の関係を示す。この試験に用いた試片は滞留水蒸気中で5分及び10分、890~1194°Cで等温酸化させたものである。圧縮試験は、試片を試験温度で10分間保持した後行った。試験温度は100°C, 200°C, 300°Cの3通りであるが、試験温度が高くなるほど同一の重量増に対する変位量は大きくなる。即ち、延性が回復する傾向が見られる。しかし、試験温度が200°C, 300°Cと高くなっても重量増が

リング圧縮試験でつぶした試片の一部(約5 mm角)をガス分析して吸収水素量を測定した。

### 3. 結 果

今回の実験で得られた結果の一部をTable 2にまとめて示す。Fig. 2で示したように反応実験は5通りの設定温度条件で行ったが、各条件は設定温度の最高値で例えば、Max. Temp. 940°Cのように表記している。又、反応管への注水量は水蒸気量の違いによる反応の変化を観察するために3通りにしたが、注入した水がすべて蒸気化したわけではないので、注水量の違いがそのまま蒸気量の違いとはならない。重量増の値はデータを一般化するために単位面積当りの重量増( $\text{mg}/\text{cm}^2$ )とした。Table 2から明らかなように、重量増は設定温度が高温であるものほど大きい。Fig. 4に3種類の注入水量について、加熱温度条件と重量増の関係を示す。注入水量1.0 mlの場合に最高温度が1080°Cと1130°Cでバラツキがあるが、全体としては高温で反応したものほど重量増の値が大きくなり、温度条件が決まれば重量増もほぼ一定の値になる。重量増と100°Cでのリング圧縮試験における変位量との関係をFig. 5に示す。Fig. 4と同様に3通りの注水量について示しているが、いずれの場合にも重量増と変位量の間には明らかに相関が見られる。即ち、変位量は重量増が約2.0  $\text{mg}/\text{cm}^2$ までは重量増の値が増加するに従って単調に小さくなるが、重量増がそれ以上の値になると0.5 mm以下の一定の値になる。リング圧縮試験で変位量が0.5 mm以下の場合には、リング状試片は殆んど塑性変形することなく割れると考えられるので、この結果から、今回の実験条件に対応するような水蒸気酸化では、ジルカロイは酸化重量増が2.0  $\text{mg}/\text{cm}^2$ 以上になると脆化すると言える。水素分析の結果もTable 2に示す。分析は1試片につき1~3回行った。同一試片で分析値のバラツキがあるが、これは吸収された水素が試片中で不均一に分布しているためである。吸収水素量は高温ほど多くなる。高温であるほど酸化反応が激しく、発生水素量も多くなるので吸収水素量も多くなるのは当然であるように思える。しかし、940°Cと1130°Cの結果を比較すると、重量増、従って発生水素量は3倍足らずであるのに対して、吸収水素量は数十倍にもなっている。このことから、高温で吸収水素量が多くなるのは、発生水素量が多くなるのと同時に水素吸収率も高くなるためである。吸収水素量とリング圧縮試験における変位量との関係をFig. 6に示す。吸収水素量は分析値が2個以上の場合には、その平均値で示してある。重量増とリング圧縮試験における変位量との間に明らかな相関が見られたのと同様、吸収水素量と変位量の間にも強い相関がある。即ち、吸収水素量が約500 wt. ppmまでは、変位量は吸収水素量の増加に伴って減少するが、吸収量がそれ以上になると0.5 mm以下の小さな値となる。従ってこの結果から、水蒸気酸化のもとで吸収水素量が約500 wt. ppmを超えるとジルカロイは脆化すると思われる。Fig. 7にリング圧縮試験の試験温度が異なる場合の重量増と変位量との間の関係を示す。この試験に用いた試片は滞留水蒸気中で5分及び10分、890~1194°Cで等温酸化させたものである。圧縮試験は、試片を試験温度で10分間保持した後行った。試験温度は100°C, 200°C, 300°Cの3通りであるが、試験温度が高くなるほど同一の重量増に対する変位量は大きくなる。即ち、延性が回復する傾向が見られる。しかし、試験温度が200°C, 300°Cと高くなっても重量増が

各々  $2.5 \text{ mg/cm}^2$ ,  $3.5 \text{ mg/cm}^2$  以上であれば、変位量は  $1.0 \text{ mm}$  以下であり延性は低い。光学顕微鏡によって酸化後のジルカロイ試片の組織観察を行ったが、観察結果の代表的な例を Fig.8 に示す。(A)(B)(C)(D) は滞留水蒸気中で最高温度  $1080^\circ\text{C}$  の遷移温度条件の酸化をさせた同一試料の組織写真である。重量増は  $2.16 \text{ mg/cm}^2$ , 吸収水素量は  $500 \sim 1000 \text{ wt. ppm}$  程度である。一方、(E) は  $10^{-3} \text{ Torr}$  程度の低圧で同一温度条件の酸化をさせたもので、重量増は  $0.20 \text{ mg/cm}^2$ , 水素含有量は水蒸気酸化に伴う水素吸収がないので低く、 $20 \text{ wt. ppm}$  程度である。(A) はバフ研磨を行っただけで顕微鏡観察したもの、(B) はバフ研磨の後、酸化したジルカロイの組織を出すために通常用いられる腐食液で表面処理を行って観察したものである。酸化被膜及び  $\alpha$  相の厚さを測定した結果、何れも  $10 \sim 20 \mu\text{m}$  程度であり、酸化の度合いは小さい。(C)(D) は水素吸収の影響を見るために用いられる腐食液で処理して観察したもので、(D) は (C) を同一視野で2倍に拡大したものである。(C) と (D) を比較すると、(C) の方がより鮮明に組織の観察ができる。これは吸収水素量が大幅に異なるためであろう。又、組織の出方が均一ではなく、はっきり出ているところと殆んど出ていないところがある。つまり、針状の prior- $\beta$  相粒界はよくわかるが侵入  $\alpha$  相に相当すると思われる領域は組織がよく出ていない。以上のことから、水蒸気酸化でジルカロイ中に吸収される水素は針状 prior- $\beta$  相結晶粒界近傍に偏析しているものと予想される。

## 4. 考 察

### 4.1 延性評価

管状試験片の機械的性質を評価する方法としてリング圧縮試験は比較的手軽な手法である。これはFig. 3に図示しているように、リング状の試片を固定し、クロスヘッドを圧縮方向に移動させて、リングが変形するときの荷重をロードセルにより検出し、圧縮速度即ちクロスヘッドの移動速度を一定に設定しておけば記録紙の送り速度との関係から変位量も求まるといふ単純な試験である。LOCA時における燃料集合体の健全性を確認する手法としてLOCA条件で酸化させたジルカロイ被覆管の延性をリング圧縮試験によって評価することが妥当であるかどうかは、LOCA時の炉内挙動とりわけ被覆管が受ける応力の解明が十分にはなされていない現状では結論づけられない。しかし、被覆管が脆化したか否かの判定を下すには十分有意な試験法であるように思われる。ただし、リング圧縮試験による延性評価で変位量がどの程度あれば延性でそれ以下では脆性であるというような目安になる値は定まっていない。国内外のレポートでも殆んど変形することなくリングが割れる場合をZero Ductility、ある程度変形した後割れる場合をPartially Ductile、リングが完全につぶれても割れない場合をDuctileとしているが、各々について変位量の範囲を定めているわけではない。今回の実験では殆んど変形しないうちに割れてしまった場合の $d_{0.8}$ はすべて0.5~1.0mm以下であり、この値が延性評価の目安になると考えられる。このことは重量増と $d_{0.8}$ との関係を示したFig. 5によっても裏付けられている。つまり、重量増の値が $2.0 \text{ mg/cm}^2$ までの範囲では、 $d_{0.8}$ は重量増の値が大きくなるに伴って単調に小さくなるが、それ以上では重量増の値の如何にかかわらず0.5~1.0mm以下の極めて小さな値となる。従って $d_{0.8}$ が0.5~1.0mm以下の場合には被覆管は脆化していると言える。又、安全評価指針では燃料被覆管温度と酸化量の上限值を規定しているが、上限値の条件、即ち1200℃でBaker-Justの式による15%の酸化量まで酸化させたジルカロイ4管のリング圧縮試験における変位量( $d_{0.8}$ )は古田等の結果<sup>(4)</sup>では1.0mm程度である。この結果からもリング圧縮試験による延性評価では0.5~1.0mmが目安になると言える。

### 4.2 酸化による脆化

重量増と100℃でのリング圧縮試験における変位量の関係を3通りの注水量についてまとめてFig. 9に示す。重量増と変位量の間には明らかに相関がある。即ち、変位量は重量増が約 $2.0 \text{ mg/cm}^2$ までは単調に小さくなっているが、重量増がそれ以上の値になると0.5mm以下の極めて小さな値となる。この傾向は注水量、従って蒸気量が異っても変わらない。本実験では水蒸気量の違いによる反応の変化を知るために、容積 $170 \text{ cm}^3$ の反応管への注水量を0.2ml, 1.0ml, 5.0mlの3通りとした。しかし、注入水がすべて蒸気化したわけではないので、注水量の違いがそのまま蒸気量の違いとはならず、圧力変換器によって実験中の水蒸気圧を測定した結果で

はすべての実験は0.1~0.3気圧程度の範囲内にあった。従って上で述べた重量増と変位量の間  
の関係はこの程度の蒸気圧で内面酸化が生じた場合について言えることである。

4.1で述べたように、延性があるかないかの目安を変位量0.5mm~1.0mmの間とすると、変  
位量と重量増が良く対応していることから、重量増では2.0mg/cm<sup>2</sup>が目安になると考えられる。  
しかし、酸化温度を1200℃以下に限れば、従来このような少ない重量増(酸化量)でジルカロイ  
が脆化するとは考えられていなかった。例えば安全評価指針で酸化量評価の計算式として採用  
されている Baker - Just の式：

$$w^2 = 33.3 t \exp(-45500/RT)$$

w: 反応ジルコニウム量(g/cm<sup>2</sup>)

R: 一般ガス定数(cal/mol・°K)

T: 温度(°K)    t: 時間(秒)

で1200℃-5分及び1000℃-5分という条件で重量増を計算してみると、各々14.70mg/  
cm<sup>2</sup>、4.33mg/cm<sup>2</sup>となる。又、Fig. 2に実線で示される解析結果のうちP.C.Tは1050℃以  
上の時間が約240秒であるので単純に1050℃-240秒として同様の計算を行うと重量増は5.45  
mg/cm<sup>2</sup>となる。安全評価指針では、燃料被覆管の酸化量の計算値は、酸化前の燃料被覆管厚  
さの15%以下でなければならないと規定しているが、被覆管の厚さを0.7mmとすると重量増  
5.45mg/cm<sup>2</sup>は約3.4%に相当する。従って本実験で脆化の目安と考えられる2.0mg/cm<sup>2</sup>と  
いう重量増の値は現行の安全評価の上では問題にならないものである。Fig. 10に水蒸気流中  
(flowing steam)及び滞留水蒸気中(stagnant steam)で酸化したリング状ジルカロイを  
100℃で圧縮した場合の重量増と変位量の関係を示す。酸化温度は950℃~1150℃の範囲で  
ある。又、図中の水蒸気流中酸化(flowing)の結果は古田等<sup>(4)</sup>が得たものである。950℃~1150  
℃のすべての温度で滞留水蒸気中酸化の結果と水蒸気流中酸化の結果では明らかに異なる。即  
ち、水蒸気流中酸化では重量増が5mg/cm<sup>2</sup>以上、場合によっては10mg/cm<sup>2</sup>以上でもジルカ  
ロイは延性を保持しているのに対し、滞留水蒸気中酸化では重量増は2~5mg/cm<sup>2</sup>と小さな  
値であるにもかかわらずすべて脆化している。現在までに行なわれてきたLOCAを模擬した多  
くの実験<sup>(5)(6)(7)(8)(9)(10)</sup>でジルカロイ被覆管脆化の原因はジルコニウム-水蒸気反応によって被覆管中に侵入  
した酸素であると言われてきた。900℃以上の高温で酸化したジルカロイ被覆管は表層から順  
に二酸化ジルコニウム、安定化α相ジルコニウム、prior-β相ジルコニウムとなるが、二酸  
化ジルコニウム及びα相は脆性であるため被覆管が延性であるか脆性であるかはprior-β相の  
性質によって左右される。つまりジルコニウム-水蒸気反応によってジルカロイ被覆管が脆化  
するのは酸素が表面から侵入し二酸化ジルコニウム層及び安定化α相の割合が大きくなるのと  
同時にβ相中へも拡散し、固溶酸素濃度が高くなることによってβ相の延性も低下するため  
であると考えられている。しかし、本実験でジルカロイ被覆管が脆化した主因を侵入酸素の影響  
であると考えるのは以下に述べる二つの理由から妥当ではない。即ち、脆化の主因を侵入酸素  
にあるとした場合、Fig. 10に示したように同一温度での水蒸気流中酸化と滞留水蒸気中酸化  
でジルカロイを脆化させる目安となる酸化量(重量増)が大幅に異なるという実験結果を説明  
できないこととPawl<sup>(11)</sup>が求めたジルコニウム中の酸素の拡散係数を用いて計算しても本実験  
条件ではβ相が脆化するほど被覆管肉厚の内部まで酸素が侵入しているとは考えられないこと

である。Pawel は二酸化ジルコニウム， $\alpha$ 相及び $\beta$ 相中の酸素の拡散係数を 1000 ~ 1500 °C の温度範囲で次のように報告している。

$$D_{\text{ox}} = 0.1387 \left[ \begin{array}{c} +21\% \\ -18\% \end{array} \right] \exp \left( -\frac{34680 (\pm 1.7\%)}{RT} \right) \quad (\text{cm}^2/\text{sec})$$

$$D_{\alpha} = 3.923 \left[ \begin{array}{c} +27\% \\ -21\% \end{array} \right] \exp \left( -\frac{51000 (\pm 1.4\%)}{RT} \right) \quad (\text{cm}^2/\text{sec})$$

$$D_{\beta} = 0.0263 \exp \left( -\frac{28200}{RT} \right) \quad (\text{cm}^2/\text{sec})$$

これらを用いて 1000 °C - 5 分という条件で各相中の酸素の拡散距離 ( $\sqrt{Dt}$ ) を計算してみると各々 68  $\mu\text{m}$ , 14  $\mu\text{m}$ , 106  $\mu\text{m}$  となる。本実験で用いた被覆管の肉厚は 700  $\mu\text{m}$  程度であるので、肉厚のすべてが拡散の比較的速い $\beta$ 相であると仮定しても被覆管肉厚の中心部まで被覆管を脆化させるほどの酸素が拡散侵入したことはない。従って滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ被覆管脆化の主因は他に求める必要がある。

### 4.3 内面酸化によるジルカロイ脆化の原因

軽水炉の LOCA 時内面酸化時の水蒸気状態を模擬した滞留水蒸気中酸化でジルカロイ被覆管の脆化挙動が水蒸気流中酸化の場合とは異なり、脆化の主因も侵入酸素ではないことを 4.2 で明らかにした。この脆化挙動の違いは滞留水蒸気中酸化と水蒸気流中酸化では水蒸気の状態ひいては雰囲気異なることに起因する。即ち、水蒸気流中酸化ではジルコニウム-水蒸気反応によって発生する水素が水蒸気の流れによって運び去られるためにジルカロイ被覆管の表面近傍の雰囲気は殆んどが水蒸気である。一方、内面酸化を模擬した滞留水蒸気中酸化では発生水素が流れ去ることがないため雰囲気中に占める水素の割合は酸化の進行と共に増大すると考えられる。本間等<sup>(12)</sup>は LOCA 時内面酸化で燃料被覆管内部が水素・水蒸気混合雰囲気になると予想し、水素・水蒸気の体積比 (水素/水蒸気) を様々に変化させて混合雰囲気下でジルカロイ酸化実験を行った。その結果、1000 °C ~ 1100 °C の温度範囲で水素が水蒸気の 2 ~ 4 割の体積を占めるようになるとジルカロイ中への水素吸収が急増し、それに伴って脆化が著しくなることを見出ししている。内面酸化を模擬した本実験でも Table 2 に示すように酸化量の多いものほど、即ち水素発生量の多いものほど吸収水素量が多くなっている。又、Fig. 6 に示すようにジルカロイ被覆管の脆化と吸収水素量は極めて良く対応している。更に、高温でのジルコニウム中の水素の拡散は非常に速い。例えば、染野<sup>(13)</sup>は $\alpha$ 及び $\beta$ ジルコニウム中の拡散係数を拡散焼鈍法により測定し、次のような結果を得ている。

$$D_{\alpha} = 4.15 \times 10^{-3} \exp \left( -\frac{9470}{RT} \right) \text{ cm}^2/\text{sec} \quad (450 \sim 700 \text{ }^{\circ}\text{C})$$

$$D_{\beta} = 7.37 \times 10^{-3} \exp\left(-\frac{8540}{RT}\right) \text{ cm}^2/\text{sec} \quad (870 \sim 1100 \text{ }^{\circ}\text{C})$$

本実験の温度条件に対応する  $D_{\beta}$  を用いて  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C} - 5 \text{ 分}$  という条件で  $\beta$  ジルコニウム中の水素の拡散距離 ( $\sqrt{Dt}$ ) を計算すると  $2747 \text{ } \mu\text{m}$  になる。従って、実験に用いたジルカロイ被覆管の肉厚が約  $700 \text{ } \mu\text{m}$  であることから、本実験中に被覆管に吸収された水素は肉厚中心部まで拡散侵入していると考えられる。Fig. 2 に示した遷移温度条件で滞留水蒸気中酸化を行った試料について最高加熱温度と吸収水素量の関係を Fig. 11 に示す。吸収水素量は、同一条件で実験した試片が複数個ある場合にはその平均値である。最高加熱温度が  $940 \text{ }^{\circ}\text{C}$  の場合には吸収水素量は  $20 \sim 50 \text{ wt. ppm}$  であり、Table 1 に示すように実験前のジルカロイ被覆管の水素含有量が  $20 \text{ wt. ppm}$  であることから、実験中の水素吸収はあまりないと言える。しかし約  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  以上では吸収水素量は大幅に増加し、最高加熱温度が  $1040 \text{ }^{\circ}\text{C}$  以上になると例外なく脆化の目安となる約  $500 \text{ wt. ppm}$  以上の水素を吸収している。 $940 \text{ }^{\circ}\text{C}$  と  $1040 \text{ }^{\circ}\text{C}$  で吸収水素量が大幅に異なるのはジルコニウム-水蒸気反応で発生する水素量が異なるためであると考えられる。しかし、 $1040 \text{ }^{\circ}\text{C}$  の酸化実験で発生した水素は  $940 \text{ }^{\circ}\text{C}$  の場合の約 1.4 倍にすぎないので、吸収水素量が大幅に異なるのは、 $1040 \text{ }^{\circ}\text{C}$  の実験では水素・水蒸気体積比が本間等<sup>(12)</sup>の指摘している一定の値（例えば  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  では 0.4）以上になったと考えられるが、 $940 \text{ }^{\circ}\text{C}$  ではそれ以下の値でしかなかったからであろう。又、本間等は水素吸収が急増する目安となる水素・水蒸気体積比は試験温度が高温であるほど小さいという事実（ $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  で 0.4、 $1050 \text{ }^{\circ}\text{C}$  で 0.25、 $1100 \text{ }^{\circ}\text{C}$  で 0.2）も見出ししている。この結果からも  $940 \text{ }^{\circ}\text{C}$  と  $1040 \text{ }^{\circ}\text{C}$  で吸収水素量が大幅に異なることが説明できる。Fig. 12 に注入水量  $1.0 \text{ mL}$  の場合について最高加熱温度と水素吸収率の関係を示す。水素吸収率は酸化量から算出される発生水素量と水素分析値の結果から計算したものである。Fig. 12 には各温度について 4～5 個の試片の平均値を示してあるが、高温であるほど水素吸収率が高くなる傾向があるが、 $1130 \text{ }^{\circ}\text{C}$  での水素吸収率は  $1080 \text{ }^{\circ}\text{C}$  より若干低くなっている。しかし、水素吸収量は Fig. 11 から明らかなように、 $1130 \text{ }^{\circ}\text{C}$  の場合が一番多い。滞留水蒸気中酸化実験でジルカロイ被覆管は酸化温度が高いほど発生水素量が多くなるため多量の水素を吸収し脆化すると結論できる。従って滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ脆化の主因は吸収水素である。

Fig. 7 にリング圧縮試験の試験温度が異なる場合の重量増と変位量との間の関係を示したが、同一試料の水素分析結果によって吸収水素量と変位量との間の関係をプロットしたものが Fig. 13 である。 $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  を境にしてそれより低い温度で酸化したものは黒丸(●)、それ以上の温度で酸化したものは白丸(○)で示している。この実験に用いた試片は  $890 \text{ }^{\circ}\text{C} \sim 1194 \text{ }^{\circ}\text{C}$  の温度範囲で滞留水蒸気中等温酸化を行ったものである。Fig. 13 からリング圧縮試験の試験温度が高いほど延性が回復する傾向があることがわかるが、回復の傾向は酸化温度が  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  以上の場合と  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  より低い場合では著しく違う。酸化温度が  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  より低い場合はリング圧縮試験温度が  $200 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$  と高くなるほど延性回復の傾向が顕著である。例えば、 $100 \text{ }^{\circ}\text{C}$  圧縮試験では吸収水素量が  $1000 \text{ wt. ppm}$  以上の試片は変位量が  $1.0 \text{ mm}$  以下と脆性であるのに対して、 $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$  圧縮試験では吸収水素量が  $2000 \text{ wt. ppm}$  以上の試片でも変位量は  $2.0 \text{ mm}$  程度であり延性を回復している。一方、酸化温度が  $1000 \text{ }^{\circ}\text{C}$  以上の試片についてはリング圧縮試験温度が  $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$  ま

で高くなっても延性の回復は僅かであり、試験した試片の変位量はすべて1.0mm以下であった。このように酸化温度1000℃を境にして、200℃、300℃でのリング圧縮試験における延性回復挙動が著しく異なる原因は二つ考えられる。まず第一にFig. 14に示すように金属組織が異なることである。酸化温度が1000℃より低い場合には、 $\alpha \rightarrow$  変態温度領域(約850℃~950℃)以上であっても冷却後の被覆管金属組織中に占める $\alpha$ 相の割合が大きい。特にFig. 14(a)に示すように、酸化温度が900℃程度では冷却後の金属組織はすべて微細な $\alpha$ 相等軸晶である。一方、酸化温度が1000℃以上の場合には被覆管の金属組織の大部分をFig. 14(b)に示すように針状 prior  $-\beta$ 相が占めるようになる。第二には侵入酸素の影響が考えられる。つまり酸化温度が高温であるほど酸化量が多くジルカロイ被覆管内部への侵入酸素量も多い。従って、吸収水素量が同じ程度の値であっても、侵入酸素量が多い場合には、300℃程度の高温で水素による脆化が回復するのを酸素が妨げる役割をする可能性がある。しかし、前にも述べたようにジルカロイ中の酸素の拡散は水素に比べると極めて遅く本実験条件で被覆管の延性に影響するほど多くの酸素が肉厚中心部まで侵入しているとは考えられない。Feamehough等は水素含有量が3通り(10, 180, 700 ppm)のジルカロイ-2シャルピー試片を用いて-196℃~400℃の温度範囲で実験し、機械的性質の試験温度による変化を報告している。彼等は750℃で真空焼鈍したジルカロイ-2を加工した後650℃で水素を吸収させている。従って金属組織は $\alpha$ 相のみである。彼等の結果ではslow bend試験で水素を180及び700 ppm吸収した試片は100℃に比べて200℃及び300℃で延性が著しく大きくなっている。この結果は、本実験で酸化温度が1000℃より低く冷却後の金属組織が $\alpha$ 相である試片の延性回復挙動と対応している。従って、水素・酸素の複合効果は現時点では不明であるものの、延性回復挙動が著しく違うのは1000℃を境にして金属組織が異なることが一番大きな原因であろう。しかし、 $\alpha$ 相等軸晶組織と針状 prior  $-\beta$ 相組織で延性回復挙動がどうして違うのか本実験では結論づけられない。ただ、吸収水素による脆化であることは明らかであるので以下に述べるような議論ができる。まず水素による脆化機構としては次の3つが考えられる。

- (1) 水素化物析出による脆化
- (2) 結晶粒界に水素が偏析することによる粒界脆化
- (3) 固溶水素による格子脆化

このうち(3)については、本実験で酸化後の冷却速度が比較的遅いこと、水素の拡散が速いこと、更に、ジルカロイ中の水素溶解度が低温では非常に小さい(300℃で約80 wt. ppm)ことから脆化機構のうち主要なものであるとは考えられない。従ってここでは(1)及び(2)を考慮すればよいことになる。本実験の組織観察では板状あるいは線状の粗大な水素化物の析出は見られなかった。これは水素化物が冷却過程中にはあまり成長できなかったためであろう。水素は光学顕微鏡では観察できない程度の微細な水素化物かクラスターとしてジルカロイ中に存在していると考えられる。水素化物析出による脆化が本実験のような滞留水蒸気中酸化における脆化機構の主要なものであるとすると、Fig. 13に示す結果は、針状 prior  $-\beta$ 相中の水素化物による脆化は300℃程度の温度では緩和されないものの $\alpha$ 相等軸晶中の水素化物による脆化は300℃程度の温度でかなり緩和されると説明できる。又、本実験の組織観察の結果では針状 prior  $-\beta$ 相結晶粒界近傍に水素が偏析していることが予想される。粒界脆化が脆化の主因であると仮



定すると、 $\alpha$ 相等軸晶粒界にも水素の偏析があるかどうかはわからないが、偏析がある場合には、針状 prior- $\beta$ 相結晶粒界の水素による脆化は 300℃程度では緩和されないものの $\alpha$ 相等軸晶粒界の水素脆化は 300℃程度でかなり緩和されることになる。 $\alpha$ 相等軸晶粒界に水素偏析がない場合には、 $\alpha$ 相等軸晶中の水素化物による脆化は 300℃程度で緩和されるが、金属組織が針状 prior- $\beta$ 相である試片は 300℃でも粒界脆化のために脆性であると言える。いずれにしても延性回復挙動が著しく違うのは金属組織が異なるためである。そして、200℃、300℃で延性が回復する傾向があるものの酸化温度が 1000℃以上のものについては脆性のままである。

#### 4.4 今後の問題点

本実験の結果を軽水炉冷却材喪失事故時の安全評価との関連で考える場合、実際の LOCA 時との条件の違いが問題となる。厳密には LOCA 状態そのままで実験を行わなければ確かなことはいえない。しかし、LOCA は仮想事故であり、LOCA 状態を解析すること自体困難である上に炉型の違い計算条件の与え方次第で LOCA 状態は大きく変化する。今回の実験条件と軽水炉 LOCA 時の破裂被覆管内面の条件とでは以下に挙げるような点で明らかに異なる。

- (1) 核燃料、核分裂がない状態での実験である。
- (2) 雰囲気異なる。
- (3) 蒸気圧異なる。
- (4) 被覆管の内外両面とも内面酸化条件の実験である。

(1) については  $UO_2$  ペレットの存在で実験結果がどの程度左右されるかが問題となる。内面酸化で被覆管が脆化する主因が吸収水素であることを前提として考えると、800℃程度以上の高温では  $UO_2$ -水蒸気反応による水素発生も予想されるので本実験の結果が実際以上に厳しいものであるとはいえない。核分裂で発生する中性子等による照射効果も LOCA 時内面酸化による被覆管脆化を緩和する方向に働くとは考え難い。(2) については、本実験は水蒸気だけの雰囲気中で酸化を行ったが、ジルコニウム-水蒸気反応による水素発生があるので結果的には水素水蒸気混合雰囲気下での酸化であると考えられる。一方、LOCA 時には、破裂被覆管内面はプレナムガス(He)、水素、水蒸気および F.P. の混合雰囲気下で酸化される。He は高温でも不活性であるが、He の存在が水素吸収による被覆管脆化機構を大きく変化させるかどうかは今後の問題となろう。F.P. の影響については予想できない。(3) 本実験の水蒸気圧は 0.1～0.3 気圧程度であるのに対し、LOCA 解析の結果では LOCA 初期を除けば 1～3 気圧程度と 1 オーダーの違いがある。しかし、川崎等<sup>(17)</sup>は 1 気圧の水蒸気中で模擬燃料棒の破裂後酸化実験を行い 1000℃-4 分でも内面酸化によって被覆管が脆化する場合があるという結果を得ている。従って水蒸気圧の違いによる影響があるとしても内面酸化による被覆管脆化機構を左右するほどのものではないと考えられる。次に(4)について、本実験では被覆管の内外両面とも内面酸化条件であることから被覆管の片面だけが内面酸化をうける LOCA 時より内面酸化による脆化を過大評価する可能性があることが指摘されよう。しかし、内面酸化による脆化の主因は吸収水素であり、4.3 で述べたようにジルカロイ中の水素の拡散は高温で非常に速いので、片面からの吸収であろうが両面からの吸収であろうが短時間のうちに被覆管を脆化させるという機構で大きな違いはな

いと考えられる。ただし、吸収水素量については本実験では過大評価している可能性がある。

以上の考察において、内面酸化によるジルカロイ被覆管の脆化についてある程度明らかにしてきたが、LOCA時内面酸化を正確に評価・検討するために更にLOCA条件に近づけた模擬実験を行い多くのデータを蓄積していく必要がある。

## 5. 結 論

軽水炉の冷却材喪失事故時に燃料被覆管が破裂した場合の内面酸化による被覆管脆化挙動を明らかにするためにLOCA安全解析における燃料被覆管表面温度の計算例に合わせて滞留水蒸気中におけるジルカロイ被覆管酸化実験を行い以下の結論を得た。

- (1)滞留水蒸気中酸化によって酸化重量増が増加するほどジルカロイ-4被覆管は脆化する傾向を示した。酸化重量増が約 $2.0\text{mg}/\text{cm}^2$ 以上になると例外なく著しく脆化していた。
- (2)滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ-4被覆管脆化の主因は被覆管中の吸収水素である。  
100°Cでのリング圧縮試験において、吸収水素量が約500 wt. ppm以上の被覆管は著しく脆化していた。
- (3)リング圧縮試験温度が200°C, 300°Cと高い場合、酸化した被覆管の延性は100°C圧縮試験より回復する傾向があった。しかし、延性回復の程度は酸化温度1000°C以上の被覆管と1000°Cより低い被覆管では大きく異なっていた。酸化温度1000°C以上の被覆管は300°Cでのリング圧縮試験でも延性は殆んどなかった。
- (4)酸化温度の違いで高温リング圧縮試験での延性回復の程度が違うのは1000°Cより低い温度で酸化した被覆管の金属組織は $\alpha$ 相等軸晶の占める割合が多かったのに対して1000°C以上で酸化した被覆管の金属組織は針状prior- $\beta$ 相になっていたためである。

## 謝 辞

本研究を行うにあたり、水素分析を行って下さった分析センター星野昭、磯修一の両氏に又、実験装置の製作にあたって御協力をいただいた分析センター木村喜久雄氏に心から感謝の意を表します。

## 5. 結 論

軽水炉の冷却材喪失事故時に燃料被覆管が破裂した場合の内面酸化による被覆管脆化挙動を明らかにするためにLOCA安全解析における燃料被覆管表面温度の計算例に合わせて滞留水蒸気中におけるジルカロイ被覆管酸化実験を行い以下の結論を得た。

(1)滞留水蒸気中酸化によって酸化重量増が増加するほどジルカロイ-4被覆管は脆化する傾向を示した。酸化重量増が約 $2.0\text{mg}/\text{cm}^2$ 以上になると例外なく著しく脆化していた。

(2)滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ-4被覆管脆化の主因は被覆管中の吸収水素である。

100°Cでのリング圧縮試験において、吸収水素量が約500 wt. ppm以上の被覆管は著しく脆化していた。

(3)リング圧縮試験温度が200°C、300°Cと高い場合、酸化した被覆管の延性は100°C圧縮試験より回復する傾向があった。しかし、延性回復の程度は酸化温度1000°C以上の被覆管と1000°Cより低い被覆管では大きく異なっていた。酸化温度1000°C以上の被覆管は300°Cでのリング圧縮試験でも延性は殆んどなかった。

(4)酸化温度の違いで高温リング圧縮試験での延性回復の程度が違うのは1000°Cより低い温度で酸化した被覆管の金属組織は $\alpha$ 相等軸晶の占める割合が多かったのに対して1000°C以上で酸化した被覆管の金属組織は針状prior- $\beta$ 相になっていたためである。

## 謝 辞

本研究を行うにあたり、水素分析を行って下さった分析センター星野昭、磯修一の両氏に又、実験装置の製作にあたって御協力をいただいた分析センター木村喜久雄氏に心から感謝の意を表します。

References

- (1)燃料安全研究委員会：JAERI-M7247 (1977)
- (2)古田照夫，橋本政男，大友隆，川崎了，本間功三：JAERI-M6339 (1975)
- (3)本間功三，橋本政男，古田照男，大友隆，川崎了：JAERI-M6602 (1976)
- (4)古田照夫，川崎了，橋本政男，大友隆：JAERI-M6601 (1976)
- (5)Hobson, D. O. and Rittenhouse, P. L. : ORNL-4758 (1972)
- (6)Hardy, D. G. : CONF-730304 (1973) p. 254
- (7)Meservey, R. H. and Harzel, R. : IN-1389 (1970)
- (8)Junke, E. F. and White, J. F. : GEMP-731 (1970)
- (9)Bradhurst, D. H. and Heuer, P. M. : J. Nucl. Mater. 55 (1975) p. 311
- (10)川崎了，古田照男，橋本政男：JAERI-M6181 (1975)
- (11)Pawel, R. E. : ORNL/NUREG-5 (1976)
- (12)本間功三：私信
- (13)染野 檀：金属学会誌 24 (1960) p. 249
- (14)Fearnehough, G. D. and Cowan, A. : J. Nucl. Mater. 22 (1967) p. 137
- (15)Mallet, M. W. : BMI-1028 (1955)
- (16)Morize, P. et al. : Zircaloy cladding diametral expansion during a  
LOCA  
Specialist meeting on the behavior of water reactor fuel elements  
under accident conditions, Spåtind, Norway, Sep. (1976)
- (17)川崎 了：私信

Table.1 Chemical composition of zircaloy - 4 ( wt. % )

Sn	Fe	Cr	Fe+Cr+Ni	Al	B	Cd	Co	Cu	Hf	Mn	Si
1.46	0.22	0.10	0.32	0.0063	<0.00005	<0.00005	<0.0005	0.0010	0.0083	<0.0010	0.0030
Ti	W	U	Pb	Cl	Mg	Ca	C	O	H	N	Zr
0.0010	<0.0010	<0.00035	<0.0010	<0.0020	<0.0005	<0.0005	0.0080	0.1280	0.0020	0.0018	bal.

Table 2 Experimental Results

Sample No.	Max.temp. (°C)	Amount of water (ml)	Weight Gain (mg/cm <sup>2</sup> )	Hydrogen content (wt.ppm)	Deflection (mm)
485	940	1.0	1.17	20 20	4.00
486	940	1.0	1.14	20 20 70	4.80
487	940	1.0	1.04	10 10 20	5.35
488	940	1.0	1.14	50 120	2.55
509	940	5.0	1.44	30	4.80
511	940	5.0	1.34	50	4.95
524	940	0.2	1.43	20 40	5.75
490	980	1.0	1.39	110 150	3.90
491	980	1.0	1.49	210 280	3.05
492	980	1.0	1.38	60 140	3.85
493	980	1.0	1.39	250 290	3.75
512	980	5.0	1.48	50	4.65
514	980	5.0	1.65	240 480	3.05
529	980	0.2	1.70	160 670	2.60
531	980	0.2	1.94	250 700	1.30
494	1040	1.0	1.46	120 300 300	2.15
495	1040	1.0	1.41	110 110 390	2.10
496	1040	1.0	1.66	420 610	1.35
497	1040	1.0	1.97	660 1200	0.25
515	1040	5.0	1.71	310 470	2.25
517	1040	5.0	1.95	660 1080	0.25
534	1040	0.2	2.09	340 1030	0.35
499	1080	1.0	1.87	620 890	0.40
500	1080	1.0	2.08	510 1300	0.35
501	1080	1.0	3.32	1500	0.45
502	1080	1.0	2.46	540 1010	0.35
519	1080	5.0	2.37	380 1320	0.30
520	1080	5.0	1.95	260 840	0.95
535	1080	0.2	2.83	1040 1390	0.30
536	1080	0.2	2.18	290 780	0.35
504	1130	1.0	2.45	510 1110	0.35
505	1130	1.0	3.71	650 650 1350	0.40
506	1130	1.0	3.22	920	0.25
507	1130	1.0	3.52	770 1030 1830	0.20
508	1130	1.0	3.33	860 1820	0.20
521	1130	5.0	3.22	770 1670	0.25
522	1130	5.0	3.43	800 890	0.22
523	1130	5.0	3.38	1710 1770	0.15

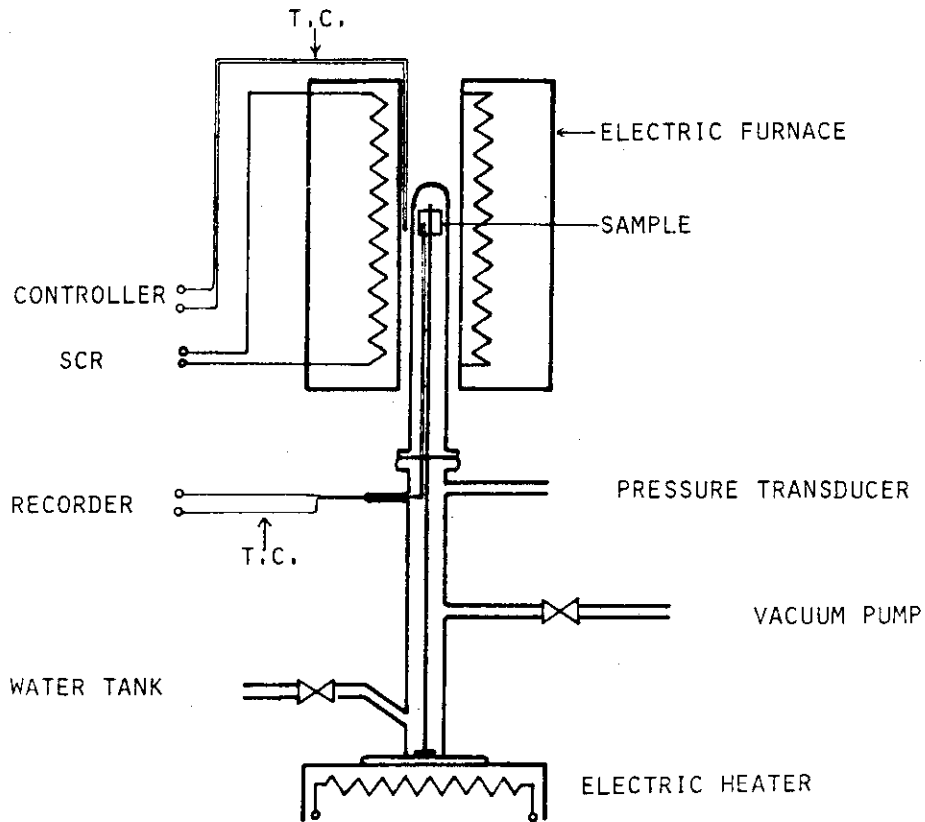


Fig. 1 Apparatus for Zircaloy-stagnant steam reaction

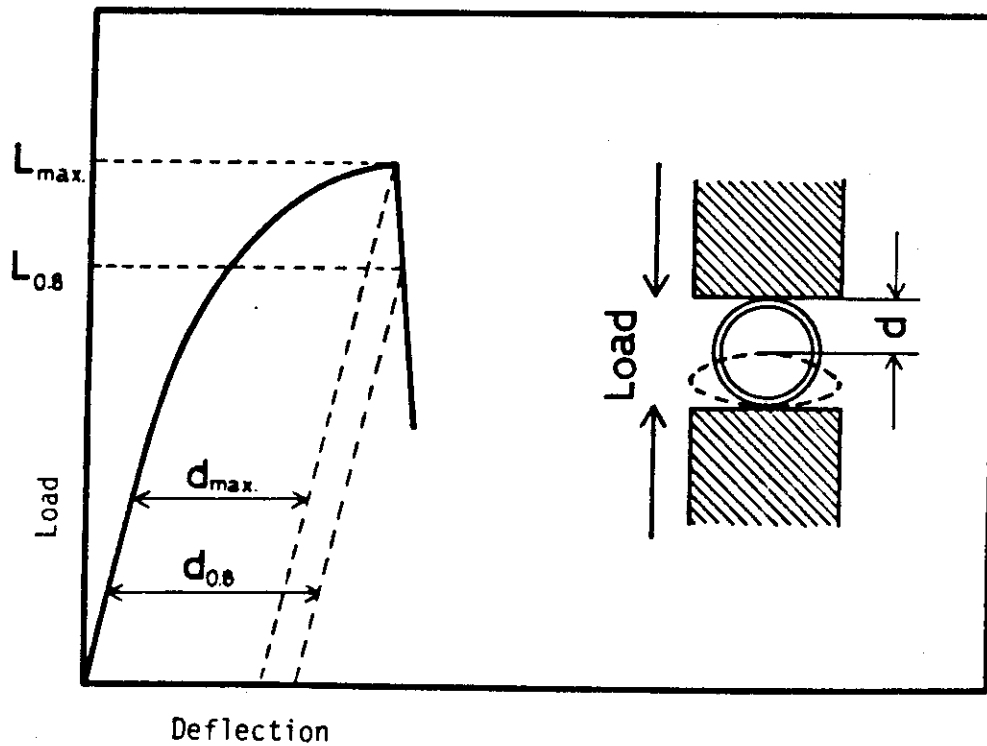


Fig. 3 Schematic illustration of a ring compression test and a load-deflection curve



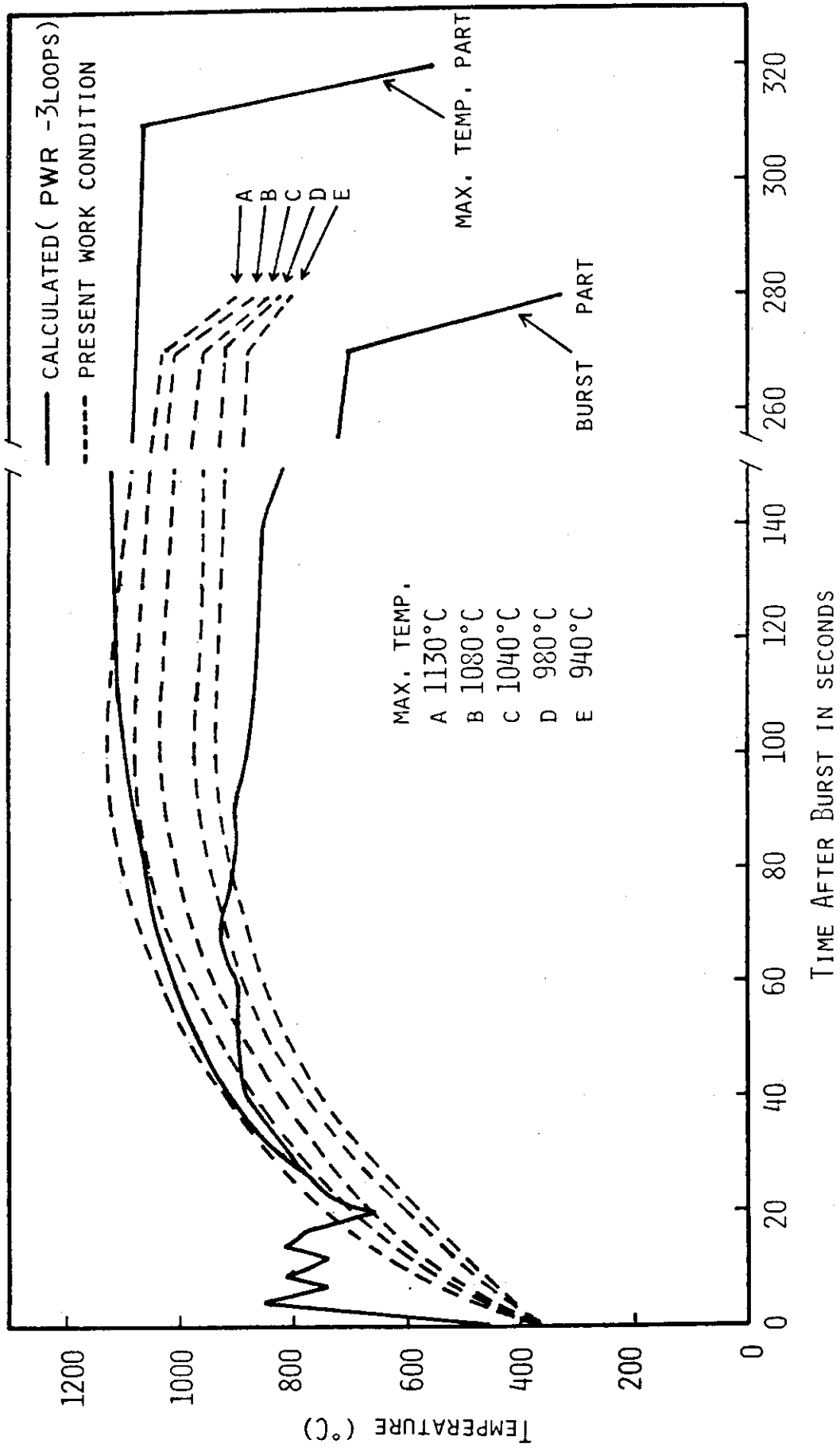


Fig. 2 Temperature rise during LOCA and present work temperature change

JAERI-FRL3-U-015

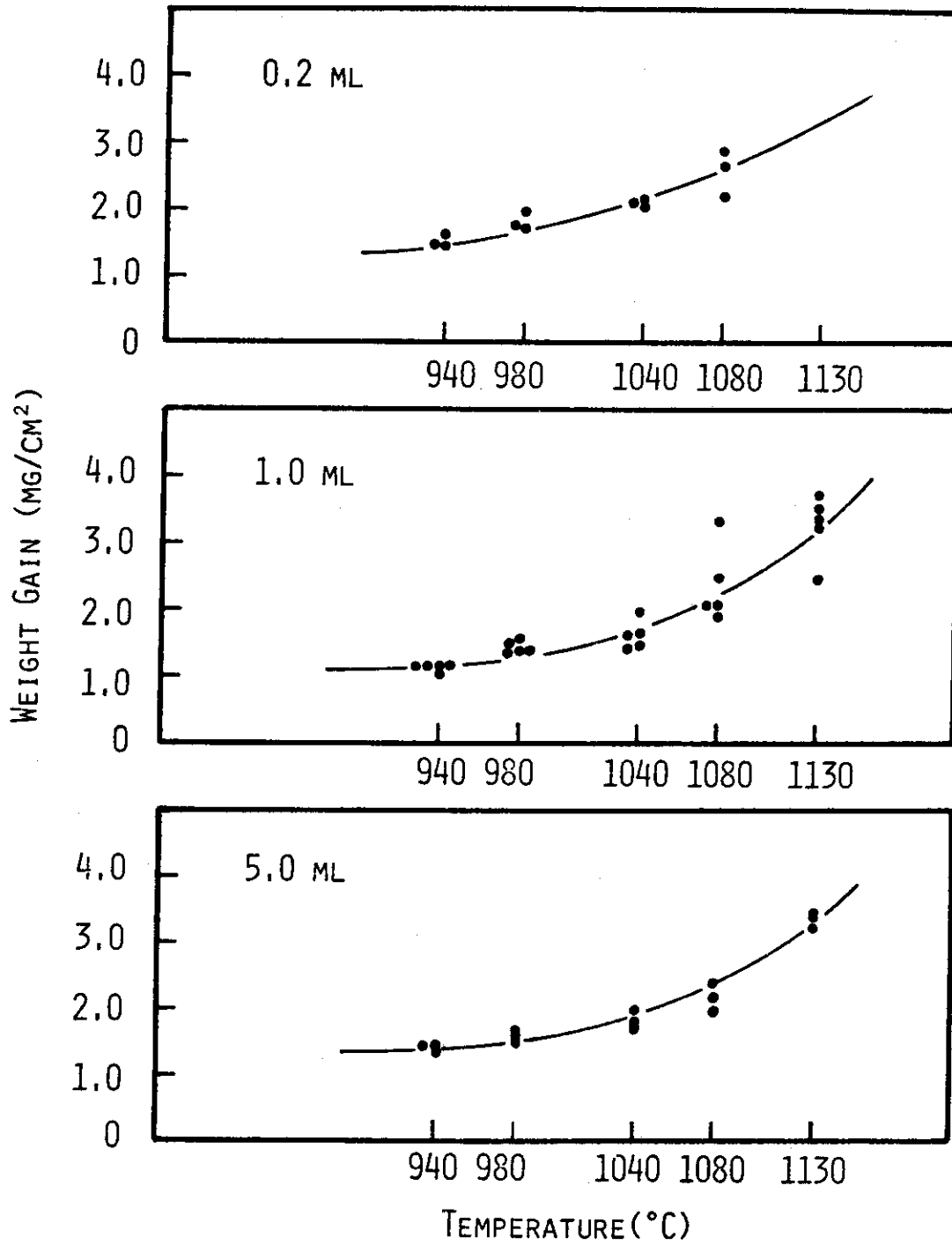


Fig. 4 Weight gain as a function of max. temp.

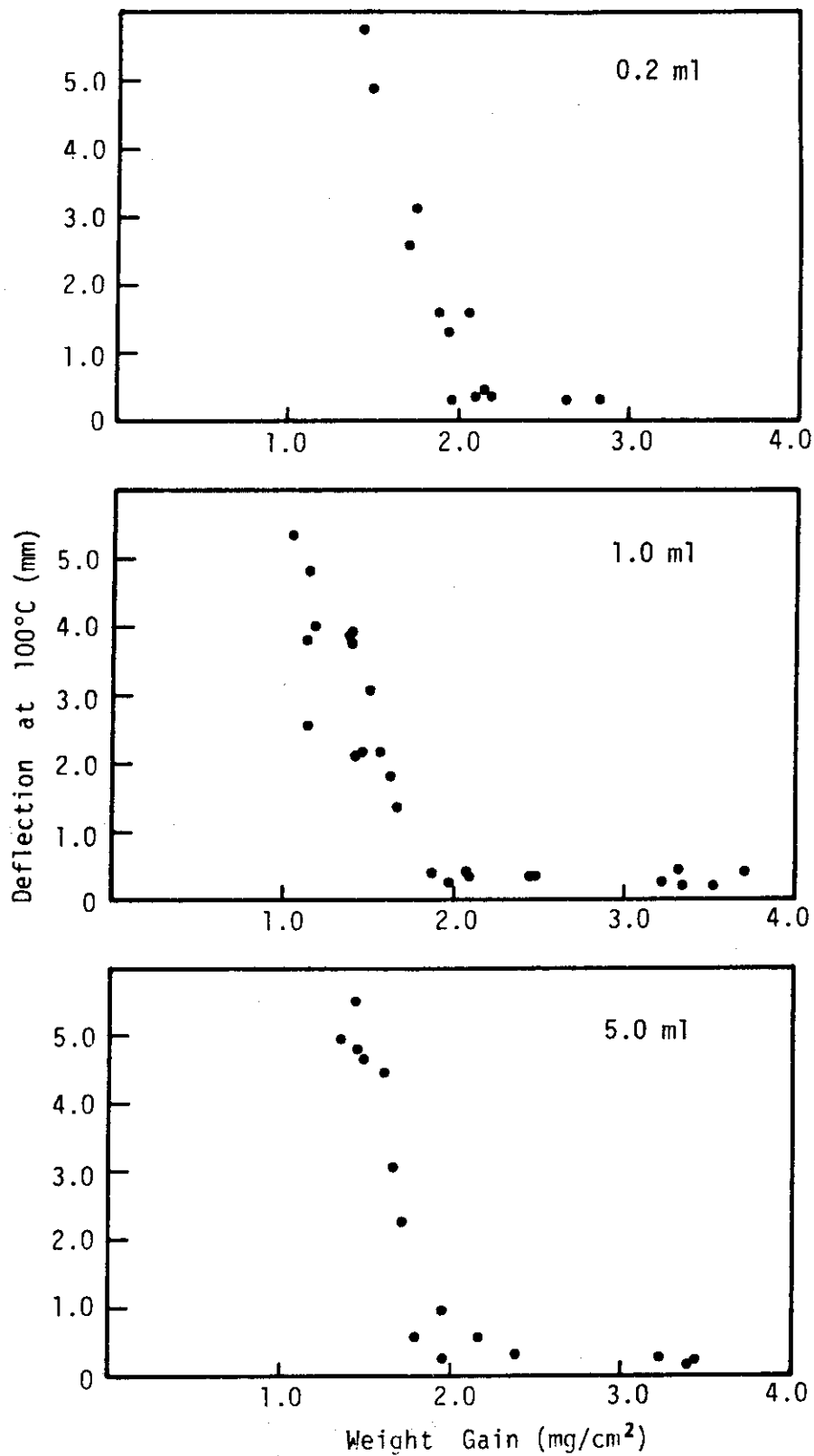


Fig. 5 Deflection of specimens oxidized in stagnant steam as a function of weight gain

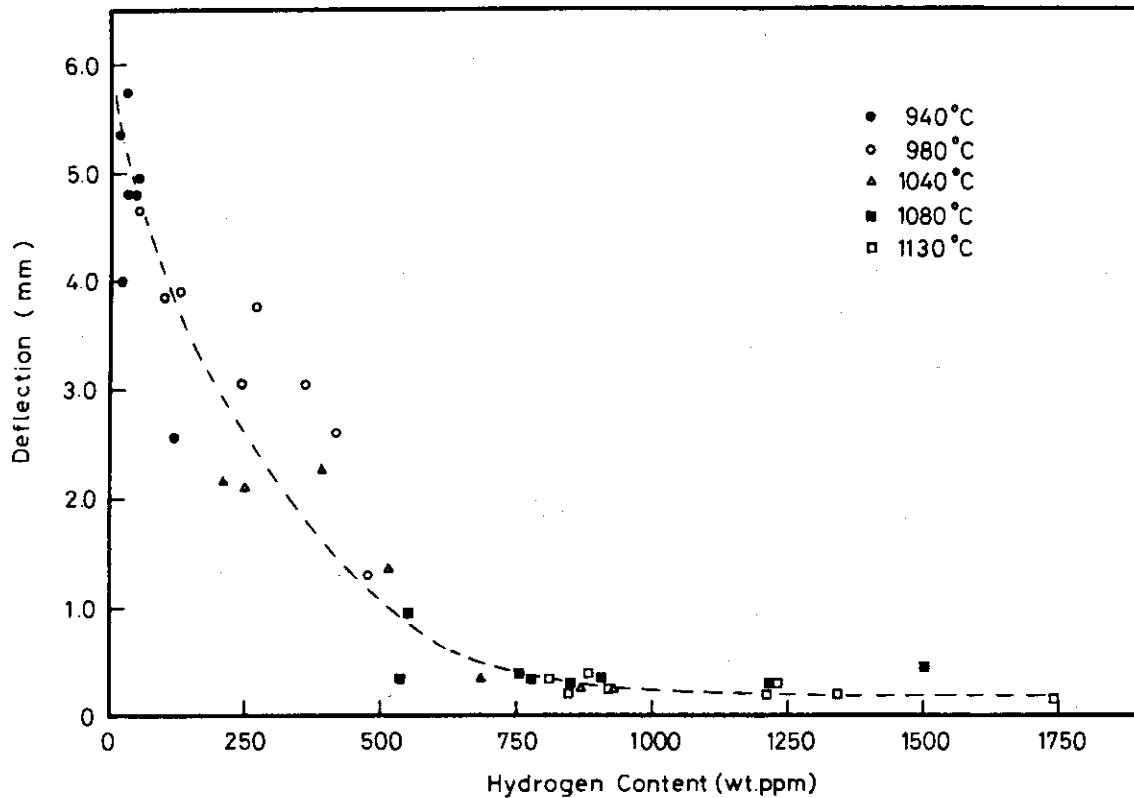


Fig. 6 Ductilities of specimens oxidized in stagnant steam as a function of hydrogen content (Ring compression test temp. 100°C)

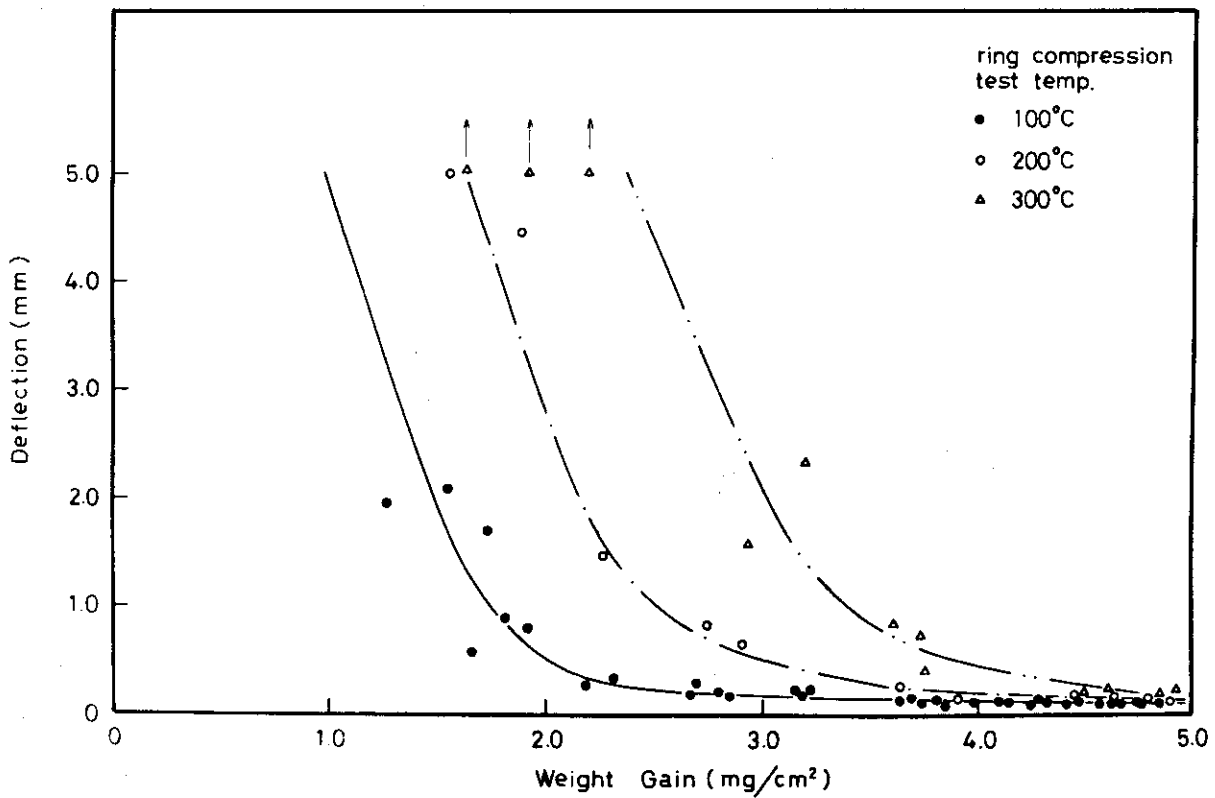


Fig. 7 Ductilities of specimens oxidized in stagnant steam as a function of weight gain

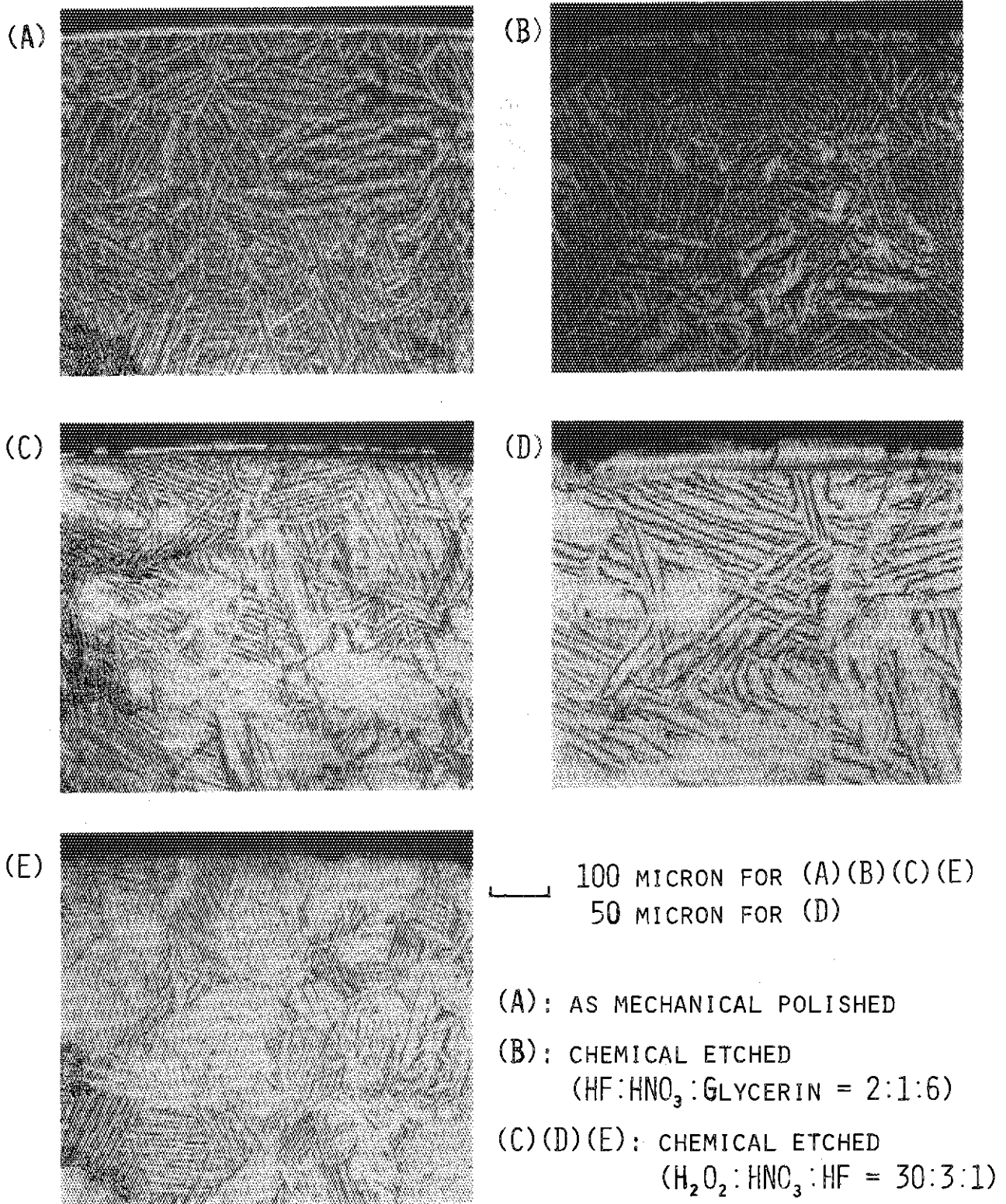


Fig. 8

OPTICAL MICROGRAPHS OF OXIDIZED ZIRCALOY-4

(A) (B) (C) (D): OXIDIZED IN STAGNANT STEAM AT MAX. TEMP. 1080°C FOR 270 SEC. (W.G.: 2.16MG/CM<sup>2</sup>)

(E) : HEATED IN LOW PRESSURE ATMOSPHERE AT MAX. TEMP. 1080°C FOR 270 SEC. (W.G. 0.20MG/CM<sup>2</sup>)

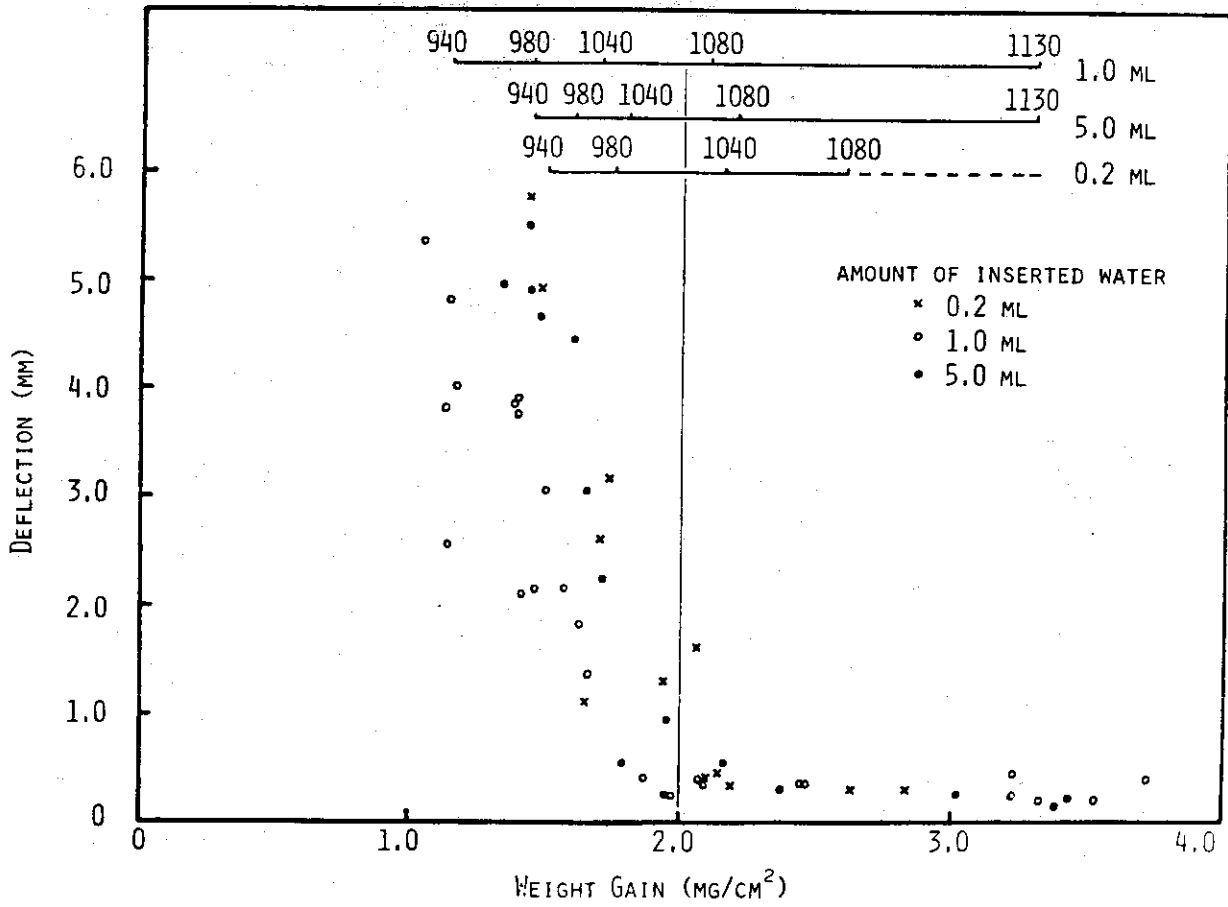


Fig. 9 Deflection of specimens oxidized in stagnant steam as a function of weight gain

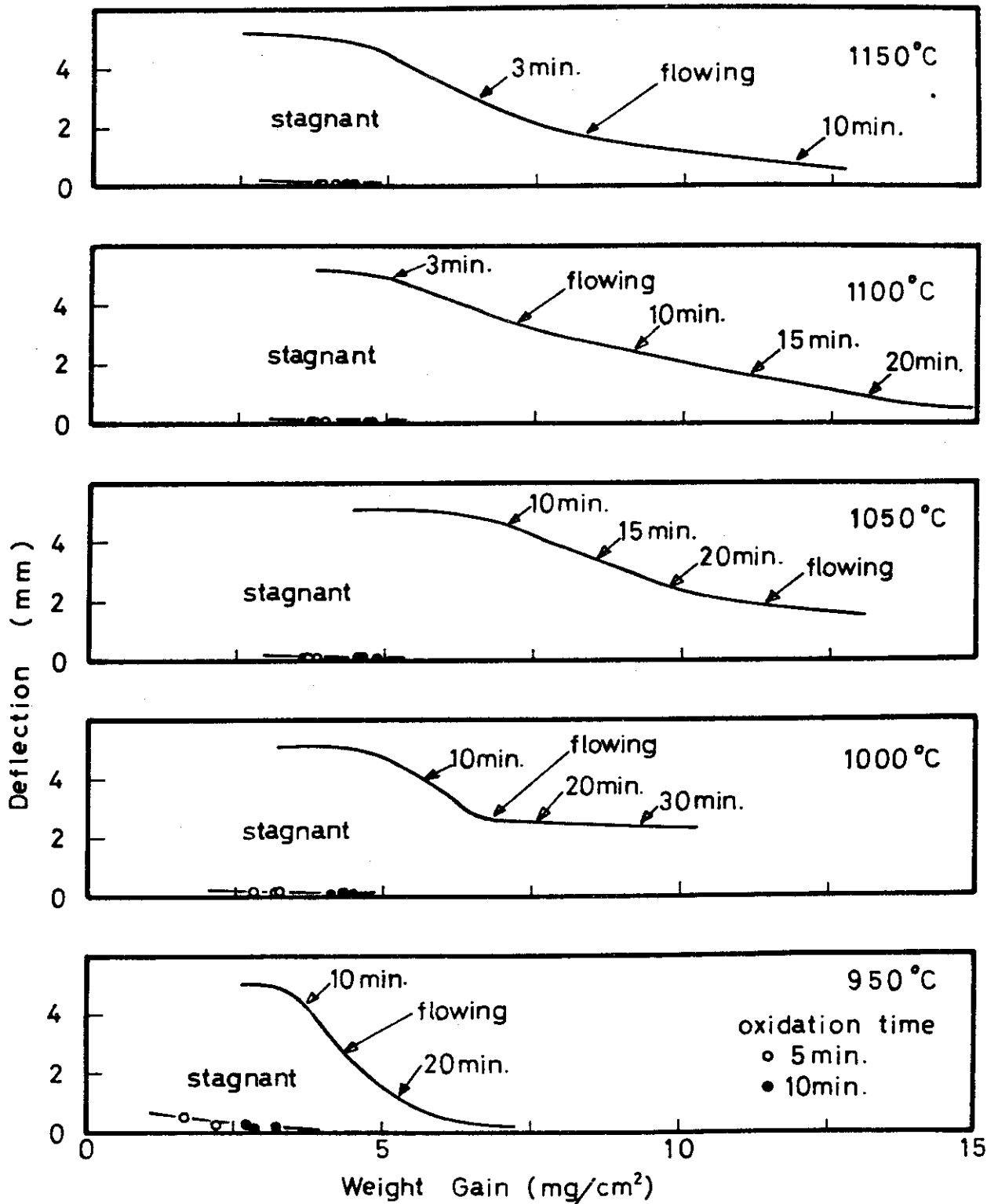


Fig. 10 Ductilities of specimens oxidized in stagnant and flowing steam as a function of weight gain (Ring compression test temp. : 100°C)

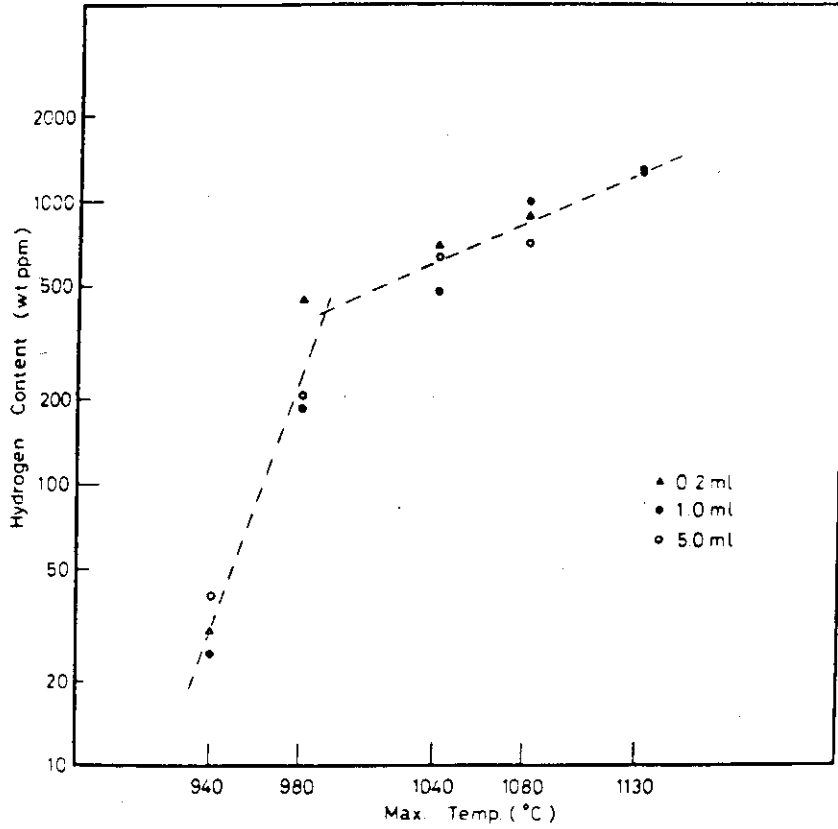


Fig. 11 Hydrogen content of specimens oxidized in stagnant steam as a function of max. temp.

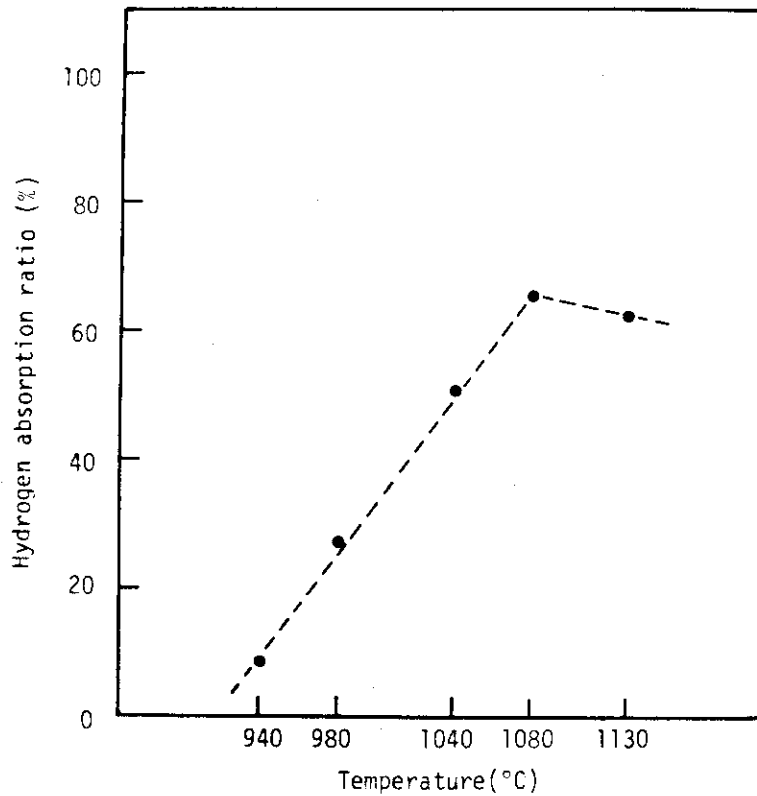


Fig. 12 Hydrogen absorption ratio as a function of max. temp.



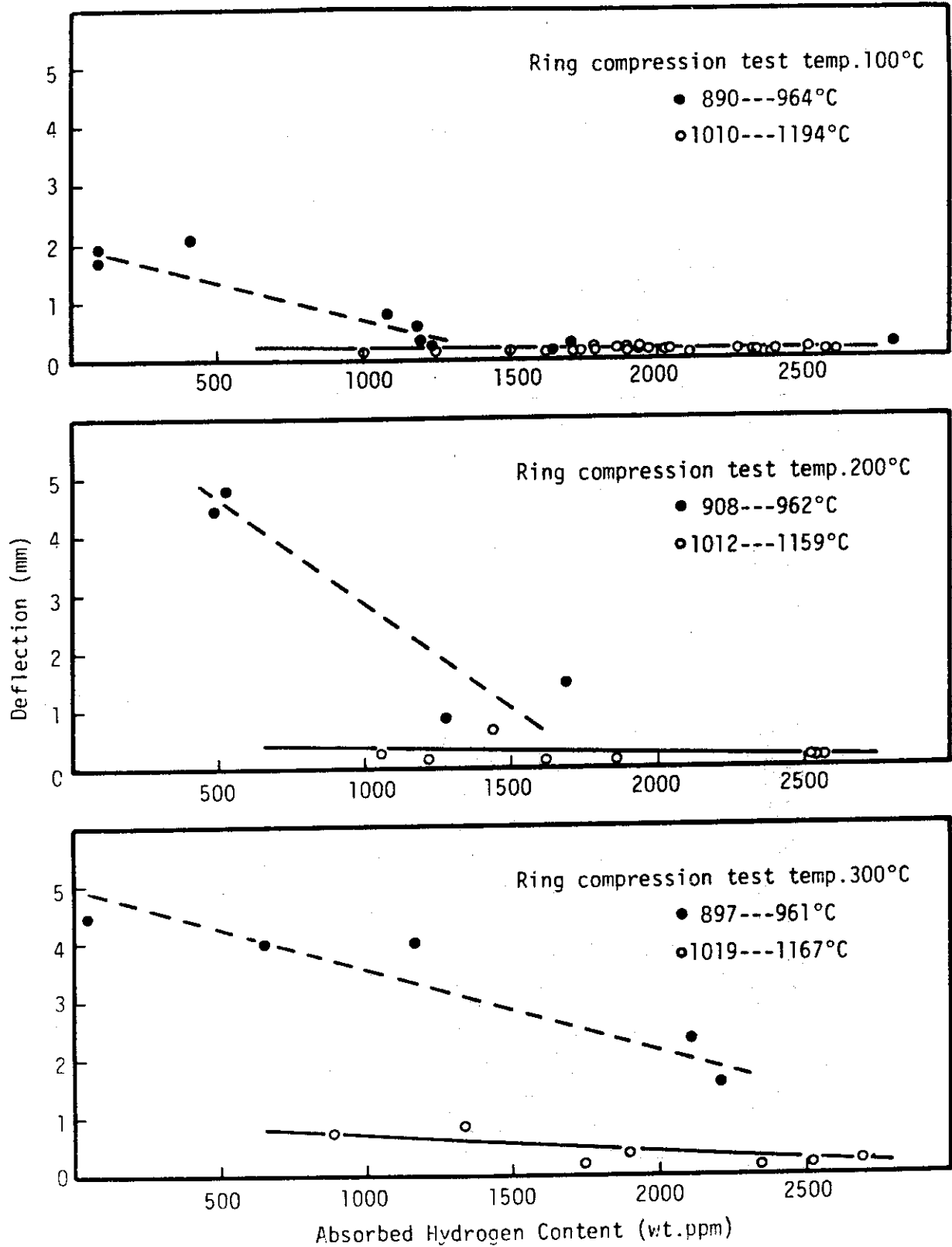


Fig. 13 Hydrogen absorption ratio as a function of max. temp.

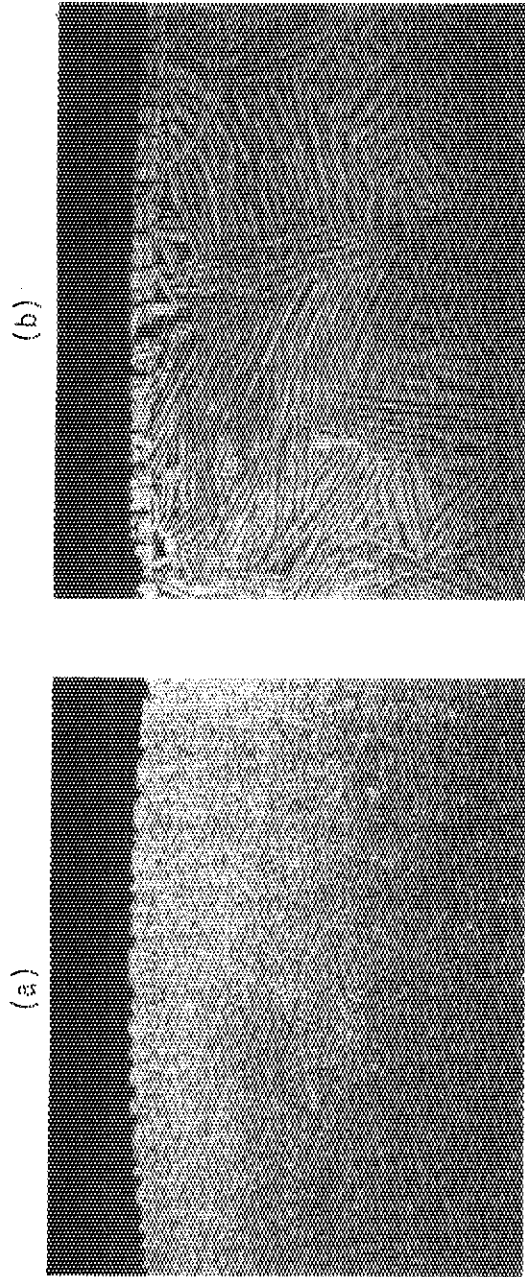


Fig.14 Optical micrographs of oxidized zircaloy-4

(a) : Oxidized in stagnant steam at max. temp. 940°C for 270 sec.

(b) : Oxidized in stagnant steam at max. temp. 1130°C for 270 sec.