

JAERI-M
83-070

軽水炉冷却材喪失事故再冠水時の熱衝撃に
対するジルカロイ被覆管の耐破壊特性

1983年5月

上塚 寛・古田 照夫・川崎 了

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1983

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

軽水炉冷却材喪失事故再冠水時の熱衝撃に対する
ジルカロイ被覆管の耐破壊特性

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

(1983年4月12日受理)

軽水炉の冷却材喪失事故再冠水時の熱衝撃に対するジルカロイ被覆管の耐破壊特性を調べるために、再冠水時の燃料挙動を検討すると共に、模擬燃料棒を用いて燃料棒破裂-酸化-急冷実験を行った。

非拘束条件下の急冷による被覆管の破壊・非破壊限界酸化条件は、等温酸化温度1050～1330℃に対して、等価被覆酸化量(ECR)換算で35～38%であった。この ECR 値は Chung 等が決定した値とほぼ一致している。一方、拘束条件下の急冷による限界条件は、酸化温度930～1310℃に対して、19～24% ECR であった。この値は安全評価指針における基準値(15% ECR)より十分大きい。また、拘束条件下の急冷による被覆管の破壊に関しては、酸素だけではなく、被覆中に吸収された水素も支配的な役割を果たすことがわかった。被覆に吸収された水素は δ -ZrH_x として析出していた。

Fracture-bearing Capability of Zircaloy Cladding on Thermal-shock during the Reflood Stage of a Loss-of-Coolant Accident in LWRs

Hiroshi UETSUKA, Teruo FURUTA and Satoru KAWASAKI

Division of Nuclear Safety Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received April 12, 1983)

Integral tests of rod-burst, oxidation and thermal-shock were performed using simulated fuel rods to examine the fracture-bearing capability of Zircaloy-4 cladding during the reflood stage of a LOCA in LWRs.

The failure-nonfailure boundary oxidation condition of the cladding on quenching under no constraint condition lay in the region of $ECR = 35 \sim 38\%$ for the isothermal oxidation temperature between 1050 and 1330°C. This value of ECR is in good agreement with that obtained by Chung et al.

The boundary oxidation condition of the cladding on quenching under constraint condition lay in the region of $ECR = 19 \sim 24\%$ for the isothermal oxidation temperatures ranging 930 ~ 1310°C. This value is sufficiently large compared with the criterion of 15% ECR in Japanese acceptance criteria for ECCS.

Hydrogen as well as oxygen played a dominant role in the fracture behavior of the rod during flooding under constraint condition. A large portion of hydrogen absorbed by the cladding precipitated in the transformed- β -phase layer as δ -ZrHx.

Keywords: Loss-of-Coolant, Zircaloy, Fuel Cladding, Oxidation, Hydrides, Reflood, Thermal-Shock, Fracture

目 次

1. 緒 言	1
2. 非拘束条件下での急冷実験	5
2.1 模擬燃料棒および実験装置	5
2.2 実験手順	5
2.3 実験結果と考察	6
3. 拘束条件下での急冷実験	11
3.1 温度変化に伴うジルカロイ被覆管の伸縮	11
3.2 実験手順	15
3.3 実験結果と考察	16
4. 結 論	22
謝 辞	22
参考文献	23

CONTENTS

1. Introduction	1
2. Rod-burst, Oxidation and Thermal-shock Test under No Constraint Condition	5
2.1 Simulated Fuel Rod and Apparatus	5
2.2 Experimental Procedures	5
2.3 Results and Discussions	6
3. Rod-burst, Oxidation and Thermal-shock Test under Constraint Condition	11
3.1 Expansion and Shrinkage of Zircaloy Cladding during Temperature transient	11
3.2 Experimental Procedures	15
3.3 Results and Discussions	16
4. Conclusions	22
Acknowledgment	22
References	23

1. 緒 言

軽水炉の冷却材喪失事故 (LOCA) 時における燃料被覆管の健全性を評価するために、数多くのジルカロイ-水蒸気酸化実験が実施されてきた^{(1)~(5)}。また、燃料被覆管の健全性は、酸化したジルカロイ被覆が著しく脆化するか否かという点で検討されてきた。このような検討は、被覆管がある程度の延性を保持している限り、LOCA時に燃料棒に加わると予想される様々な応力は被覆管の変形によって緩和され、そのために燃料棒の大破損は防止できるという安全側の立場からの検討である⁽⁶⁾。また、酸化ジルカロイ管の延性は、主にリング圧縮試験における試片の変位量によって評価されてきた。その結果、酸化ジルカロイ被覆が著しく脆化しないための上限の条件として、最高被覆温度 1200℃、酸化量 15% ECR という酸化条件が定められた (ECCS 性能評価のための安全評価指針)。そしてこの基準値は酸素のみに起因するジルカロイ被覆管の脆化に関しては十分根拠のある値であることが広く認められてきた。

しかし、ジルカロイ被覆脆化におよぼす破裂被覆管内面での酸化挙動の影響を調べるために実施した模擬燃料棒破裂・酸化実験の結果によって、内面酸化が生じた場合には、酸素による脆化に水素脆化が付加されるために、安全評価指針における基準値 (15% ECR^{*}) よりも大幅に低い酸化条件でジルカロイ被覆が著しく脆化する可能性のあることが明らかになった。それ故、酸化ジルカロイ管の健全性をリング圧縮試験における変位量によって判定する限りにおいては、この基準値が妥当なものであるとは言えなくなった。

一方、リング圧縮試験による脆化判定と LOCA 時における燃料被覆管の健全性を直接対応づけることはできない。何故ならば、リング圧縮試験によって著しく脆化すると判定される条件まで酸化したジルカロイ被覆が LOCA 時に生ずると予想される応力によって壊れるとは必ずしも言えないからである。そこで視点を変えて、単に脆化するか否かというあいまいな概念ではなく、一定の酸化を受けたジルカロイ被覆が耐えることのできる荷重という定量的な値 (耐荷重特性) によって被覆の健全性を評価しようとしても現状では困難である。何故ならば、LOCA 時に燃料被覆管が受ける外力に関する計算例はあるが、信頼できるものではないからである。従って、酸化被覆管がどの程度の荷重に耐えれば良いかという形での評価はできない。となると、更に別の形のアプローチによって、LOCA 時における燃料被覆管の健全性を検討しなければならないことになる。このような問題提起に対する 1 つの解答は、実炉の LOCA を十分に模擬した条件下でクエンチ実験を実施し、ジルカロイ被覆の破損限界酸化条件を決定することである。

いわゆるクエンチ実験は LOCA 燃料安全研究の初期 (1970 年頃) にいくつか実施された^{(11)~(13)}。そして、これらの結果によって、LOCA 時における燃料棒の脆化と破砕を防ぐために、被覆の最高酸化温度と酸化量についての定量的な制限値を設定する必要性が指摘された。しかし、これらの実験は実炉の LOCA 条件を十分に模擬したものではなかった。それは、被覆管のふくれ

ECR^{*}: 酸化反応でジルカロイ被覆管中に吸収された酸素がすべて化学量論的な化合物である ZrO_2 を被覆表面で生成すると仮定した場合の全被覆肉厚に対する ZrO_2 膜の厚さの割合

変形・破裂の生じない（従って内面酸化は生じ得ない）模擬燃料棒による実験である点、更に、クエンチ時の燃料棒拘束状態が考慮されていない点等においてである。最近、ChungとKasser⁽¹⁴⁾は実験条件をよりLOCA時の燃料挙動に近づけてクエンチ実験を行い、その結果に基づいて脆化基準を提案している。Integral Tube-Burst/Thermal-Shock Experimentと称する彼等の実験は、長さ200mm模擬燃料棒にヘリウムガスあるいはアルゴンガスで約70kg/cm²の内圧をかけ、直接通電による昇温中に燃料棒をふくれ変形・破裂させ、一定の水蒸気酸化を与えた後、下部からの注水によってクエンチするというものである。この実験の主な結果を図1に示す。この図は、等温酸化温度と酸化量（ECR）で規定されるfailure map上にクエンチ実験の結果を3通りに区別して表示したものである。すなわち、クエンチによって酸化被覆管が破損した場合を●、クエンチでは破損しなかったもののその後の取り扱い中に壊れた場合を⊙、壊れなかった場合を○で表示してある。この結果は、一定の酸化を受けたジルカロイ被覆がクエンチによって破損する酸化条件と破損しない酸化条件をほぼ区分できることを示している。そして、図中の実線は破損・非破損の限界酸化条件を示していると考えられる。また、この限界条件は破線で示されるアメリカの安全評価指針における基準値（1204℃ - 17% ECR）よりも大幅に上方にある。限界条件をより詳細に検討するために、このfailure mapの一部（等温酸化温度：950℃～1350℃，ECR：20～50%）を拡大して図2に示す。この結果では、酸化温度が約1050℃より低い場合には破損例は見られない。また、酸化温度が約1100℃～1300℃の範囲内にある場合の破損限界酸化条件はECRに換算した酸化量で34～40%の間にあると考えることができる。34～40%という値は基準値（アメリカ：17% ECR，日本：15% ECR）の約2倍である。それ故、Chung等が行った実験が軽水炉LOCA時の燃料挙動を十分に模擬したものであれば、安全評価指針における基準値は十分安全側に設定されたものであると言える。

小松等もChung等の実験をほぼ踏襲する形でクエンチ実験を行った。⁽¹⁵⁾ 彼等の実験とChung等の実験の相違点は、模擬燃料棒の長さ（250mm）と加熱方式（放射加熱炉による外熱式）が異なる点である。しかし、実験で得られたジルカロイ被覆の破損限界酸化条件はほぼ同じであった。

上記の2つのクエンチ実験は、Hesson等の実験に代表される初期のクエンチ実験に比べると、被覆管のふくれ変形・破裂を考慮に入れた点で、よりLOCA時の燃料挙動に近い条件で行われたものであると言える。⁽¹¹⁾

LOCA時に燃料棒が受ける最大の応力は再冠水過程のクエンチ時に生ずるという考え方が一般的である。従って、LOCA時における燃料の健全性を評価するための実験としてクエンチ実験を行うことは合理的な選択であろう。

しかし、Chung等および小松等のクエンチ実験にも明らかに欠点がある。それは、クエンチ時に燃料被覆管に生じる応力は局所的な熱応力（熱衝撃）のみであるという前提に立って実験を行っている点である。

クエンチ時には局所的な熱応力だけではなく、軸方向の引張り応力が生じる可能性がある。このことは図3に示す模式図によって説明される。PWR用燃料集合体には全燃料棒数の約10%にあたる本数の制御棒クラスター（制御棒案内管+制御棒）が組み込まれており、制御

棒案内管 (guide tube) は支持格子 (spacer grid) に機械的に固定されている。また、燃料棒は支持格子のバネによって支持されている。原子炉運転時における燃料被覆管と制御棒案内管の温度はほとんど変わらないが、LOCA時には図3に模式的に示すようにある程度の温度差が生じると予想される。この温度差が、被覆管に軸方向応力が生じる要因の一つである。燃料被覆管と制御棒案内管の間に温度差が生じたとしても、燃料棒が支持格子によって何の拘束も受けないのであれば被覆管に軸方向の応力が加えられることはない。しかし、いくつかの原因によって、燃料棒は支持格子に拘束される可能性がある。一つには、燃料棒が支持格子部分においてもふくれ変形し、機械的にほぼ固定されてしまうという可能性が挙げられる。実際、このような例は著者等が実施した模擬燃料集合体破裂試験⁽¹⁶⁾において観察されている。また、支持格子には主にニッケル基合金であるインコネルが用いられているが、ニッケルとジルコニウムは1000℃程度の温度でも共晶を生成することが知られている。従って、LOCA時に被覆管温度が十分に上昇した場合には、ジルカロイ被覆と支持格子とが共晶液体を生成し化学的に固着する可能性がある。更に、被覆と支持格子との間の摩擦も燃料棒の拘束にある程度の寄与をすると考えられる。それ故、LOCA時には、燃料被覆は支持格子によって一定の拘束を受けた状態にあると考える方が、完全に非拘束の状態にあると考えるより一般性がある。

燃料棒が支持格子によって拘束される場合に、被覆管に軸方向荷重が生じることについても図3に単純化して示した模式図によって説明することができる。燃料棒と制御棒クラスターが高温状態にある時点 (t_2) では、燃料被覆管と制御棒案内管の材質は同一 (ジルカロイ-4) であり、被覆管の方がより高温になるので、温度上昇による管の伸長量は燃料被覆管の方が大きい。そして、案内管は支持格子と機械的に固定され、被覆管も上述した原因により一定の拘束を受けると考えられるので、被覆管には軸方向の圧縮荷重が生じることになる。しかし、高温状態では一定の酸化を受けたジルカロイ管にも十分な延性があると考えられるので、この圧縮荷重は案内管あるいは被覆管の変形によって緩和されると思われる。一方、再冠水過程のクエンチ時 (t_3) には、案内管と被覆管は温度の降下に伴って収縮する。収縮量は温度降下の程度に依存するので、被覆管の収縮量の方が大きい。従って、被覆管には軸方向の引張り荷重が生じることになる。

上述の検討では、燃料被覆管と制御棒案内管の温度差に起因する軸方向荷重のみを考慮したが、同一集合体中の各燃料棒の間にも温度差は存在する。従って、燃料棒間の温度差に起因する軸方向荷重も考慮する必要がある。また、BWR用燃料集合体についても、集合体の構成はPWR用とは異なるものの、同様の検討ができる。

Chung等および小松等は模擬燃料棒の伸縮を全く拘束しない状態でクエンチ実験を行い、ジルカロイ被覆のクエンチによる破損限界酸化条件を求めた。しかし、軽水炉LOCA時の再冠水過程で、燃料棒が全く拘束されない状態でクエンチされるとは考え難い。そして、全く拘束されない状態すなわち非拘束条件下でのクエンチと一定の拘束を受けた条件下でのクエンチとでは、ジルカロイ被覆の破損限界酸化条件は当然異なるものと予想できる。それ故、著者は非拘束条件下および拘束条件下での模擬燃料棒破裂・酸化・クエンチ実験を実施し、ジルカロイ被覆の破損挙動の違いを検討すると共に破損限界酸化条件を決定した。非拘束条件下のクエンチ実験については第2章で、また、拘束条件下でのクエンチ実験については第3章で述べる。

ところで、燃料棒が再冠水過程のクエンチ時に一定の拘束を受けるということは予想できるが、拘束の程度については現状では未解明である。それ故、第3章で述べるクエンチ実験では、安全側に立った条件設定を行った。すなわち、考えうる最も厳しい条件である完全拘束条件を選択した。

2. 非拘束条件下での急冷実験

2.1 模擬燃料棒および実験装置

実験に用いた模擬燃料棒の模式図を図4に示す。被覆管の材質はPWR用のジルカロイ-4である。その組成を表1に示す。

模擬燃料棒の全長は500mmであり、被覆管内部には燃料ペレットを模擬するためのアルミナペレットを内蔵している。また、昇温中に内圧破裂させるためにプレナムガスとして高純度ヘリウムガスを封入した。封入圧力は 30 kg/cm^2 （室温）である。

実験装置の模式図を図5に示す。本装置はインストロン引張り試験機、赤外線加熱炉およびクエンチのための注水装置から構成される。すなわち、赤外線加熱炉の中心部に、その下端を固定することによって模擬燃料棒をセットし、水蒸気流中で昇温破裂させ、一定の酸化を与えた後、装置下部からの注水によってクエンチするというLOCA時の燃料挙動を単純化して模擬できるようにした装置である。また、引張り試験機の上部チャックを締めることによって模擬燃料棒の上端も固定できるので、クエンチ実験を非拘束と拘束の2つの条件で行うことができる。更に、拘束条件下でのクエンチ実験（第3章）においては、ロードセルによって模擬燃料棒に生じる軸方向荷重を測定できる。赤外線加熱炉の温度コントロールおよび被覆管温度測定のために、模擬燃料棒表面の軸方向3点すなわち模擬燃料棒の軸方向中心位置と中心位置から上下に60mm離れた位置の3点に熱電対（Pt-Pt/13%Rh, 0.3mm ϕ ）をスポット溶接した。また、実験した各模擬燃料棒の酸化温度としては、3組の熱電対の指示温度中の最高値を採用した。

図6に等温酸化中の模擬燃料棒軸方向温度分布の一例を示す。これは最高温度を 1000°C に保持した場合の例であるが、軸方向温度分布を詳細に測定するために、50mm間隔で計11点の熱電対をスポット溶接した。赤外線加熱炉の発熱体（タングステンヒーターランプ）の有効発熱長は254mmであるため、図に示すように模擬燃料棒の軸方向中心部約200mmの間の温度分布は良好である。中心部分約100mmの間の温度差は約 20°C 、200mmでは約 50°C 以内である。

2.2 実験手順

図7は拘束条件下のクエンチ実験で測定した被覆温度の変化と荷重変化を示す一例である。この図に従って実験手順を説明する。尚、非拘束条件下のクエンチ実験と拘束条件下のクエンチ実験の手順の相違点はクエンチ直前に引張り試験機の上部チャックを締めて模擬燃料棒上端を固定するか否かの違いだけである。クエンチ時の荷重変化は拘束条件下の実験においてのみ測定されるが、これについては3.2で述べる。

模擬燃料棒は約1分間で 920°C ～ 1330°C の所定温度まで昇温させた。昇温開始時温度

($\sim 100^{\circ}\text{C}$)から所定の等温酸化温度までの平均昇温速度は $15\sim 20^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ であった。被覆管は昇温中に 900°C 前後の温度で破裂した。破裂後は被覆内面も破裂開口から流入する水蒸気によって酸化されることになる。所定温度で $3\sim 180$ 分間等温酸化した後、直ちに赤外線加熱炉の電源を切り、下部注水バルブを開けて模擬燃料棒をクエンチした。大破断LOCAに対する安全解析の結果では、再冠水速度は毎秒数cm程度とされているので、本実験ではクエンチフロントの上昇速度が約 $4\text{ cm}/\text{秒}$ になるように注水装置を調節した。ただし、模擬燃料棒のクエンチ中には、冷却水の沸騰が生じたので、クエンチフロントの上昇速度は一様ではなかった($4\text{ cm}/\text{秒}$ は平均値である)。本実験における水蒸気流量はすべて $0.66\text{ g}/\text{cm}^2\cdot\text{min}$ であった。

2.3 実験結果と考察

本実験に供した模擬燃料棒、すなわち一定の酸化($20\sim 46\%$ ECR)を与えた後、非拘束条件下でクエンチした模擬燃料棒の本数は50本であるが、それらの中でクエンチによって破損したものは28本であった。その数例を図8に写真で示す。クエンチによって破損した模擬燃料棒の中では、1箇所破断したものが最も多く、その数は破損例28例中17例を占めた。また、2箇所破断したものは3例、3箇所以上破断したもの(一部が細片に砕けたものを含む)は8例であった。破損形態は図の4例中2例(No.122, No.124)で見られるように比較的単純な形態、すなわち円周方向のクラックに沿って破断するというものが多かったが、酸化量が増大するほど複雑になる傾向が見られた。

クエンチによって破損した模擬燃料棒の破断位置と酸化量(ECR)の関係を図9に示す。ここでいう破断位置とは破裂開口中心から破断箇所までの距離のことである。この結果から、模擬燃料棒が破裂開口中心部で破断する例は比較的少なく、多くは破裂開口中心から $10\sim 40\text{ mm}$ 程度離れた位置で破断していることがわかる。また、大部分($\sim 85\%$)は破裂開口中心から約 60 mm 以内の範囲で破断したことがわかる。しかし、酸化中の模擬燃料棒の軸方向温度分布(図6)から考えて、中心部分に比べると酸化量が著しく少ないと思われる位置で破断した例もある(模擬燃料棒は例外なく軸方向のほぼ中心部分で破裂した)。破断位置が破裂開口中心から約 $70\sim 180\text{ mm}$ 離れているこれらの5例に共通している実験条件は、等温酸化時間が比較的長い($60\sim 110$ 分)条件であったということである。ただし、酸化時間が長くても、破裂開口部近傍で破断した例も多い。従って、酸化時間と破断位置の間に明確な相関があるわけではない。また、図9の結果は酸化量と破断位置の間にも特に相関はないことを示している。

図10は本実験の結果を等温酸化温度と酸化時間で規定されるfailure map上にプロットしたものである。クエンチによって破損した場合を●、破損しなかった場合を○で表示してある。また、図中の3本の実線はBaker-Just式を用いて計算した3通り(15% , 20% , 40%)の酸化条件(ECR)相当する。この結果から、約 $970^{\circ}\text{C}\sim 1330^{\circ}\text{C}$ の温度範囲では、模擬燃料棒は 40% ECR以上の酸化条件ではクエンチによって例外なく破損し、 20% ECR以下の酸化条件では破損しないことがわかる。従って、この等温酸化温度範囲におけるジルカ

ロイ被覆の破損限界酸化条件は20% ECRと40% ECRの間にあると考えることができる。また、破損限界条件は、酸化温度が約1050℃以上の温度範囲では40% ECRに近いほぼ一定の酸化条件であると思われるが、より低温側では、低下する傾向すなわち20% ECR側に近づく傾向が見られる。

クエンチによるジルカロイ被覆の破損限界酸化条件を更に詳細に検討するために、同一の実験結果を等温酸化温度と酸化量 (ECR) で規定される failure map 上にプロットしたのが図11である。この結果も、図10で見られた傾向すなわち破損限界酸化条件が約1050℃という等温酸化温度を境にしてその上下の温度範囲で明らかに異なることを示している。つまり、等温酸化温度が約1050℃～1300℃の範囲である場合の限界酸化条件はほぼ一定で約35～39% ECRであると考えられるものの、約1050℃以下の温度範囲では等温酸化温度が低いほど限界酸化条件も低下することを示している。本実験で得られた約1050℃～1300℃の等温酸化温度範囲における破損限界酸化条件 (35～38% ECR) は Chung 等が求めた同じ温度範囲における結果 (34～40% ECR) と極めて良く一致している。しかし、約1030℃以下の温度範囲における結果は明らかに矛盾したものである。Chung等の報告においては、等温酸化温度が約1030℃以下の場合には、酸化量が50～60% ECRであっても破損例は見られない (図2参照)。一方、本実験の結果では約1030℃より低い等温酸化温度範囲における限界酸化条件は徐々に低下する傾向が見られる。

等温酸化温度が約1030℃より低い場合にジルカロイ被覆の破損限界酸化条件が低下するという本実験の結果は、以下の考察から、この程度の温度を境にしてその上下の温度でジルカロイの長時間酸化挙動が異なることに起因すると考えられる。

900℃～1300℃の温度範囲で、ジルカロイ被覆に一定の酸化量を与えるための酸化時間は温度によって大幅に異なる。例えば、ジルカロイ-水蒸気反応が Baker-Just の式に従うと仮定して、30% ECR という酸化量を与えるために必要な時間を概算すると、各酸化温度に対する時間は以下のようなようになる (被覆管の肉厚を620 μm とした場合)。900℃-554分、1000℃-119分、1050℃-60分、1100℃-32分、1200℃-10分、1300℃-4分。つまり、1000℃～1050℃以下の温度では1時間以上という長時間の酸化が必要になることになる。

軽水炉 LOCA で問題とされる温度範囲 (900℃～1300℃) でのジルカロイ-水蒸気反応に関する研究は数多く行われており、^{(18)~(23)}酸化反応速度式はほぼ確立されている。ただし、大破断 LOCA に対する安全解析によって、燃料被覆管が1000℃程度の高温に曝される時間は数分程度であると計算されていることから、これらの研究のほとんどは比較的短時間 (数分～数十分) の反応を対象としたものである。それ故、従来の結果をそのまま長時間の酸化反応量計算に適用できるか否かについては必ずしも明らかではなかった。しかし、最近 KfK の Schanz ⁽²⁴⁾ と Leistikow によってより長時間 (～360分) のジルカロイ-水蒸気反応に関する実験データが報告された。彼等のデータによって本実験の結果を検討することができる。

図12に Schanz と Leistikow が求めた主な結果を示す。この図は900℃～1300℃の温度範囲で水蒸気中等温酸化したジルカロイ-4の重量増と酸化膜の厚さの時間変化を示すものである。重量増と酸化時間の関係を示す図 (A) から、1000℃における酸化挙動は他の温

度における挙動と明らかに異なることがわかる。従来の研究結果によつて、ジルカロイ-水蒸気反応速度定数(K)は、

$$K = K_0 \exp(-Q/RT)$$

K_0 : 定数 Q : 反応の活性化エネルギー

R : ガス定数 T : 反応温度(K)

によつて表わされることが知られている。従つて、反応時間の長さにかかわらず、酸化反応が同一のメカニズムによつて支配されるのであれば一定時間の酸化による反応量は反応温度が高温であるほど多くなるはずである。しかし、1000℃での酸化による反応量は約120分以上の酸化時間に対しては1050℃での反応量より多く、更に約220分以上の酸化時間に対しては1100℃での反応量より多くなっている。この結果は、一定時間以上の長時間の酸化においては、1000℃における酸化反応を支配するメカニズムが他の温度での反応を支配するメカニズムとは異なることを示している。また、1050℃以上の温度での反応速度式は放物線則に従うことがわかる。

酸化温度の違いによつて反応速度式が異なることは酸化膜の厚さと酸化時間の関係を示す図(B)においても明らかである。すなわち、酸化温度が1100℃~1300℃の各温度である場合には、反応速度式はすべての時間範囲で放物線則である。しかし、酸化温度が1000℃である場合、反応速度式は酸化開始時点から約15分後に放物線則から3乗則に変化し、更に約15分後には1次則に変化する。酸化温度が950℃および900℃の場合にも、1000℃の場合ほど顕著ではないが、長時間の酸化では反応速度が大きくなる傾向が見られる。Schanz等は金属組織観察の結果から、このような現象は一定のbreakaway(酸化膜剥離)効果すなわち酸化物スケールの機械的な劣化、つまり、酸化膜中に気孔やクラックが形成されることに起因すると述べている。更に、彼等は気孔やクラックが形成される原因としては従来から言われてきているいくつかのメカニズム、すなわち、(1)酸化膜が成長する際に生じる応力による割れ、(2)酸化膜表面で発生する割れ、あるいは、(3)酸化物の再結晶や粒成長に伴つて生じる気孔、更に、(4)酸化物の相構造の変化に伴う気孔形成、などが組み合わさつた結果であろうと結論している。

長時間の酸化によつて酸化膜中に気孔やクラックが生じることは図12の2つの図(A),(B)を比較することによつても予想できる。すなわち、1000℃、1100℃の2通りの酸化温度に対する重量増と酸化膜厚さの時間変化を比べると、その値が逆転する時間は、重量増の場合で約220分、酸化膜厚さの場合には約90分であり大幅に異なる。この結果は、1000℃の長時間酸化で形成された酸化膜の見かけの厚さは1100℃の酸化で形成されたものより厚いものの、密度は小さいことを示している。それ故、これらの酸化膜の物理的な形態は異なり、1000℃の長時間酸化で形成された酸化膜には気孔やクラックが含まれていると考えることができる。

ジルカロイを950℃および1000℃で長時間酸化した場合、酸化膜に気孔やクラックが生じ、そのために反応速度式が放物線則からずれるというSchanz等の指摘は、本実験で得られた結果を支持するものである。

すなわち、本実験においても長時間酸化したジルカロイ被覆の表面に形成された酸化膜の形態は酸化温度の相違によつて異なる。その例を図13に写真で示す。No202は970℃で

184.5分間酸化した場合であり、酸化量の計算値は30% ECRである。一方、No.145は1100℃で49分間酸化した場合であり、酸化量は37% ECRである。970℃で長時間酸化したジルカロイ被覆 (No.202) の表面には灰白色の酸化膜が形成されており、しかもその酸化膜にはクラックが入り、一部は剝離しているという breakaway 現象が見られる。しかし、1100℃で37% ECRまで酸化したジルカロイ被覆 (No.145) の表面に形成された酸化膜には breakaway 現象は全く見られない。

このような酸化膜の形態の違いは Schanz 等の指摘と一致するものである。また、図 11 の failure map で見られた傾向、すなわち約 1050℃以下の等温酸化温度範囲では、破損限界酸化条件が低下するという事実も、ジルカロイを 950℃～1000℃程度の酸化温度で長時間酸化した場合には酸化膜の breakaway によって反応速度が大きくなる、従って、計算上の酸化量より実際の酸化量はもっと大きい値になると考えれば、矛盾なく説明することができる。そして、この食い違いは、計算式が比較的短時間の実験データに基づいて決定されたものであることに起因する。950℃～1000℃程度の温度でジルカロイを酸化した場合に、計算上の酸化量より実際の酸化量の方が大きい値になることは、Schanz と Leistikow が求めた2つの結果、すなわち実測値と計算値を比較検討することによって知ることができる。例えば、図 11 に示す結果から、等温酸化温度が 1000℃である場合の破損限界酸化条件は 27% ECR 程度 (この値を達成するために要する時間は約 97分) であると考えられることができるが、この 1000℃-97分という酸化条件で生じる酸化量 (重量増) は、図 12 (A) の結果によれば約 18mg/cm² (1800mg/dm²) である。一方、彼等は 700℃～1300℃の温度範囲におけるジルカロイ-水蒸気反応量 (重量増) を求める実験式として、

$$W = 0.724 \sqrt{t} \exp(-10481/T) \quad \text{g/cm}^2$$

を報告している。彼等はこの式が適用できるのは 15分以内の酸化に限られるとしているが、この式に 1000℃-97分という酸化条件を代入して重量増を計算すると 14.6mg/cm²となる。この例では、実際の重量増の方が、短時間の酸化に適用できる計算式によって計算した結果より 20%以上大きい値である。

Chung 等のクエンチ実験においては同様の傾向は見出されていない。彼等が得た結果 (図 1) では、約 1030℃以下の温度範囲で酸化した模擬燃料棒の破損例は 1つもない。著しい酸化 (50～70% ECR) を与えた場合にでもクエンチによる破損は生じていない。それ故、彼等のデータは上述の考察の結果とは明らかに矛盾している。現状では、彼等の結果に対する合理的な説明はできないが、このような食い違いはおそらく実験条件の違い、例えば加熱方法や水蒸気雰囲気との与え方の違いか温度測定の不確定さ等に起因するものであろう。一方、小松等が求めた実験データは、約 1050℃～1300℃の温度範囲で酸化した場合に限られたものであり、この問題についての参考データとはならない。

低温側のデータには食い違いが見られるものの、1050℃～1300℃の温度範囲に対しては、本実験を含めて 3つの非拘束条件下のクエンチ実験で得られた破損限界酸化条件は一致している。従って、クエンチ時に生じる局所的な熱応力 (熱衝撃) によるジルカロイ被覆の破損限界酸化条件は約 35～40% ECR であると考えられる。ただし、長時間の酸化では

breakaway 現象によって反応速度が大きくなるような酸化温度範囲については酸化量計算の補正が必要である。

3. 拘束条件下での急冷実験

3.1 温度変化に伴うジルカロイ被覆管の伸縮

第1章で述べたように、クエンチ時には局所的な熱応力だけではなく軸方向の引張り応力が生じる可能性がある。そして、この引張り応力は、(1)燃料棒が支持格子に拘束されること、(2)クエンチ前の燃料棒と制御棒クラスターのために温度差が存在するため、クエンチ時の燃料被覆管と制御棒案内管の収縮量が異なること、という2つの要因が組み合わさって生じるものである。燃料棒がいくつかの原因によって支持格子に拘束される可能性についても第1章で既に述べた。本小節ではもう1つの要因であるジルカロイ被覆管の伸縮について述べる。

拘束条件下のクエンチ実験における拘束の程度を評価するには、燃料棒の軸方向収縮量を知ることが必要である。燃料棒の収縮量はクエンチ時におけるジルカロイ被覆の温度変化と熱膨張データによって計算することができる。しかし、1000℃程度の高温におけるジルカロイの熱膨張に関するデータは非常に少なく、いわゆるMATPRO⁽²⁵⁾(A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior)⁽²⁶⁾のデータと最近EPR I がまとめたデータが利用できるにすぎない。しかも、この2つのデータの差は比較的大きい。

そこで、拘束条件下でのクエンチ実験に先だって、ジルカロイ-4被覆管の軸方向熱膨張率測定を実施した。測定に用いた試片は長さ15mmのリング状試片を四ツ割りにしたものである。また、熱膨張の測定には真空理工製熱膨張測定装置DL-1500型を使用した。測定はアルゴンガス雰囲気で行い、試片の昇温速度は50℃/分とした。測定結果を図14に示す。図中には比較のために、MATPROデータ(as-received材)とEPR I データ(as-received材、23.1 at.%酸素含有材、ZrO₂)も示す。本実験では25℃~1100℃の温度範囲で熱膨張を測定したが、高温であるほど熱膨張係数が大きくなる傾向がある。約800℃~1000℃の範囲において若干の変動が見られるが、この現象はジルカロイの $\alpha \rightarrow \beta$ 相変態に起因するものであろう。何故ならば、この温度範囲はジルカロイの相変態温度領域(約810℃~970℃: 図15参照)に相当するからである。

本実験の結果はEPR I のデータ(as-received材)とほぼ一致している。しかし、軽水炉燃料挙動の解析に良く利用されるMATPROモデルは約800℃以上の温度範囲で本実験およびEPR I のデータとは大幅に異なる。この食い違いはおそらく高温域におけるMATPROモデルの不確実性によって説明できよう。MATPROモデルは1961年~1965年に得られた比較的少数のデータに基づくモデルであり、しかも800℃以上の温度範囲についてはScott⁽²⁷⁾が求めた少数のデータのみに基づくものであることから不確実性が大きいとされている(モデルの精度は0~800℃の温度範囲で±20%、800℃以上の温度範囲で+100%、-50%とされている)。

また、EPR I のデータによれば、すべての温度範囲において、23.1 at.% (~5.0 wt.%) の

酸素を含有するジルカロイ-4の熱膨張率はas-received材の熱膨張率よりも大きい。そして、 ZrO_2 の熱膨張率は更に大きく、as-received材の約2倍である。それ故、酸化の進行に伴ってジルカロイ被覆管は軸方向に伸びると予想することができる。

本実験で求めた熱膨張率によってクエンチ実験におけるジルカロイ被覆管の伸長量と収縮量を概算することができる。例えば、模擬燃料棒の酸化温度が $1000^{\circ}C$ である場合の被覆管(全長 500mm)の伸長量は、管の軸方向温度分布を図6の破線によって単純化して近似すると、約 1.66mm と計算される。また、EPR Iの熱膨張データ(as-received材)によって計算すると約 1.72mm となる。

このような計算値の妥当性と酸化に伴う軸方向伸びの程度を確認するために、長さ 500mm のジルカロイ-4管に水蒸気流中で、 $15^{\circ}C/秒$ で昇温 $\rightarrow 1000^{\circ}C$ で60分間等温保持 \rightarrow 空冷という温度履歴を与えた場合の軸方向伸縮量を差動トランス式変位計で測定した。その結果を図16に示す。この結果から、ジルカロイ-4被覆管は室温から $1000^{\circ}C$ までの昇温過程(約1分間)で約 2.7mm 伸びたことがわかる。 2.7mm という値は熱膨張率と単純化した軸方向温度分布近似によって計算した値約 1.7mm に比べると60%程度大きい値である。

この食い違いの原因としてはおそらく以下の3つのことが挙げられよう。第1は、ジルカロイ管の伸長量を計算するために仮定した軸方向温度分布近似法の不現実性である。ただし、図6に示すように、管の熱膨張量の大きな割合を占める約 $950^{\circ}C$ 以上の高温部分(軸方向長さ約 200mm)に対する近似は比較的良好であると考えられるから、このことに起因する誤差はあまり大きなものではないであろう。第2には、不活性ガス中で試片を加熱することによって求めた熱膨張データを水蒸気中での加熱、すなわち、若干の酸化が生じるジルカロイ管の熱膨張計算に適用したことによる誤差である。昇温過程での酸化量自体は僅かなものであるからそれほど大きな誤差は生じないと思われるが、熱膨張データをそのまま適用することが過小評価につながることは十分にありうる。第3には、加熱実験装置や変位測定法に起因する誤差が考えられるが、これらについての具体的な評価は困難である。

室温から $1000^{\circ}C$ までの昇温中に約 2.7mm 伸びたジルカロイ管はその後の等温保持中に次第に伸びる。60分後の伸長量は約 7.4mm である。ジルカロイ管が保持時間の経過に伴って伸びることおよびジルカロイ-4と ZrO_2 の密度の違い(室温で、ジルカロイ-4： 6.55g/cm^3 、 ZrO_2 ： 5.73g/cm^3)を合わせ考えると、この伸びはジルカロイ中に酸素が吸収されることによる体積膨張に起因するものであると思われる。しかし、酸化膜(ZrO_2)が形成されるのはジルカロイ管の表面のみである。しかも、酸化によって形成される酸化膜の厚さは、例えば川崎等が求めた実験式⁽¹⁹⁾：

$$\delta^2 = 2.15 \times 10^6 t \exp(-35900/RT)$$

δ ：酸化膜の厚さ(μm)

t ：酸化時間(秒)

によって計算(酸化温度 $1000^{\circ}C$)すると、1分間で $9\mu\text{m}$ 、10分間でも $30\mu\text{m}$ 程度に過ぎない。酸化に伴って体積膨張する部分は外表面の酸化膜部分だけでなく、比較的酸素濃度の高い安定化 α 相部分もある。しかし、安定化 α 相を考慮に入れても、ジルカロイ管の肉厚 $620\mu\text{m}$ に比べるとその割合は小さい。それ故、金属相部分の変化も考慮に入れる必要がある。

この点については以下のように考えることができる。まず、酸化の進行に伴って金属相部分（保持時間中のジルカロイ管には軸方向の温度の違いによって α 、 $\alpha + \beta$ 、 β 相の各部分が存在する）にも酸素は拡散侵入する。しかし、このことによる体積膨張は極めて小さいものであろう。それよりも、 ZrO_2 と安定化 α 相および安定化 α 相と金属相の界面に発生する応力が重要な役割を演ずると考えられる。ジルカロイを $\alpha / (\alpha + \beta)$ 変態温度以上の温度で酸化すると、その金属組織は表層から順に ZrO_2 相、酸素安定化 α 相、金属相（ β 相又は $\alpha + \beta$ 相）となる。従って、酸素侵入量の異なる、つまり体積膨張割合の異なる ZrO_2 相と安定化 α 相の界面には応力が生じるはずである。そしてこの応力は安定化 α 相に対しては引張り方向に作用する。同様に金属相にも安定化 α 相との界面で引張り応力が作用する。また、 $1000^\circ C$ 程度の高温におけるジルカロイの引張り強さは比較的小さい（ $\sim 1 \text{ kg/mm}^2$ ）。それ故、保持時間中のジルカロイ管の軸方向伸びは、単にジルカロイ中に酸素が吸収されることによる体積膨張に起因すると考えるより、 ZrO_2 と安定化 α 相の界面および安定化 α 相と金属相の界面に生じる引張り応力によって金属相と安定化 α 相が変形することに起因すると考える方が合理的であり、かつ妥当であろう。

また、ジルカロイ管の伸長量を as-received 材の熱膨張率ではなく、酸素含有材や ZrO_2 の熱膨張率（図14に示すEPR I データ）に基づいて計算すると、各々、約2.5 mm、約3.4 mmとなる。図16に示す一定時間の酸化を伴う場合のジルカロイ管の伸びはこれらの値より大きい。従って、LOCA時における燃料被覆管の軸方向伸びは熱膨張率を用いた計算値よりかなり大きな値になると予想することができよう。

ところで、第1章で述べたように、LOCA時に燃料棒が高温状態にあるときに燃料被覆管に生じる応力は軸方向の圧縮応力であると考えられ、この応力はおそらく被覆管あるいは制御棒案内管の変形によって緩和されるから、小さいものであろう。考慮しなければならないのは、クエンチ時の軸方向引張り応力である。そして、この引張り応力は拘束されたジルカロイ管の軸方向収縮によって生じる。

図16の結果から、 $1000^\circ C$ への昇温と60分間の等温保持によって約7.4 mm伸びたジルカロイ管は室温までの冷却中に約1.9 mm収縮したことがわかる。従って、60分間の等温保持が終了する時点でジルカロイ管を完全に拘束した場合、冷却中および冷却後には、約1.9 mmの収縮を阻止するのに必要な荷重が軸方向引張り荷重として生じることになる。

図17に、 $1000^\circ C$ での等温保持時間を0～60分間で8通りに変化させた場合のジルカロイ管（長さ500 mm）の伸縮量の差異を対比させて示す。保持時間0分の場合、すなわち $1000^\circ C$ に到達した直後に冷却した場合の $1000^\circ C$ における伸びは2.7 mmであり、冷却後の伸びは1.5 mmである。従って、冷却中に1.2 mm収縮したことになる。保持時間が長時間であるほど、 $1000^\circ C$ における伸長量および冷却後の伸長量とも大きくなる傾向がある。しかし、単位時間当りの伸び量（mm/分）は0分～1分の間は0.8 mm/分であり比較的大きいものの、1分以降は小さい。特に5分～10分、10分～30分、30分～60分における平均伸び率は各々、0.08 mm/分、0.07 mm/分、0.05 mm/分であり極めて小さい。一方、収縮量（amount of shrinkage）は、0分～3分の間で1.2 mmから1.7 mmへと0.5 mm増加しているが、3分～30分の間ではすべて1.7 mmであり変化していない。また、保持時間が

60分になっても収縮量は1.9mmでありその増加は僅かである。従って、酸化時間が極めて短い時間(0分~2分)である場合を除けば、ジルカロイ管の収縮量は熱膨張データに基づく計算値約1.7mmとほとんど同一であると言える。

図6に示す軸方向温度分布から、最高温度が900℃および1300℃である場合の温度分布を想定し(燃料棒中心部200mmの温度を平行移動する)、図14に示す熱膨張データ(1200℃以上については外挿値)によってジルカロイ管の収縮量(又は伸長量)を計算すると、各々、1.54mm、2.60mmとなる。それ故、等温酸化温度が900℃~1300℃である本クエンチ実験における燃料棒の収縮量は約1.5mm~2.6mmの範囲であると考えられることができる。

図18に1000℃で0分、5分、30分、60分間等温酸化したジルカロイ被覆管の金属組織(変態β相領域)を示す。針状や板状の変態β相結晶は酸化時間が長くなるほど粗大化する傾向がある。また、酸化時間が30分および60分の場合にはα-incursionが見られる。このような傾向は酸化時間が長くなるに伴ってβ相中の酸素濃度が上昇することと対応している。

ところで、本実験ではLOCAクエンチ時の燃料挙動を模擬するために、長さ500mmの模擬燃料棒を有効加熱長254mmの赤外線加熱炉で加熱し破裂させ、一定の酸化を与えた後クエンチしている。そして、クエンチ時の拘束収縮量は、前述の考察から、約1.5~2.6mmであると考えられる。この程度の収縮量を拘束するという条件下でクエンチ実験を行うことが妥当であるか否かについては一定の検討が必要であろう。

全長約4mの実機燃料は6~9個の支持格子(spacer grid)を有する。⁽²⁸⁾ また、支持格子の間隔すなわち1グリッドスパンは必ずしも均一ではないが、LOCA時に最も高温になると予想される軸方向位置では約450~650mm(17×17の最新型燃料集合体では450mm程度)である。支持格子による燃料棒拘束が1ヶ所では生じない場合には軸方向の引張り荷重は生じない。燃料棒拘束の原因となる現象(ふくれ変形、支持格子との化学的相互作用など)が生じる可能性が大きいのは燃料棒の最高温度部分である。従って、考慮しなければならないのは、最高温度部分の上下にある2個の支持格子による拘束である。そして、想定される最も厳しい条件は、燃料棒が最高温度部分で2組の支持格子によってほぼ完全に拘束される場合である。それ故、軸方向の収縮量の評価は1グリッドスパン(450~650mm)について行えば良いことになる。

支持格子近傍位置は原子炉運転中の中性子フラックスが小さく、燃料の燃焼度も小さい。それ故、LOCA時の燃料棒軸方向温度分布は、1グリッドスパン中で、中央部が高温で支持格子近傍が低温であるという弧状の分布になる。ここでは安全側、すなわち軸方向の収縮量を大きく目に評価するために、1グリッドスパンにおける軸方向温度分布が均一であると仮定する。また、同じ理由から、1グリッドスパンを650mm、クエンチ直前の燃料棒温度を1200℃とする。このような仮定の下で収縮量を計算すると約5.1mmになる。この値は本クエンチ実験における拘束収縮量1.5~2.6mmと比べるとかなり大きな値である。しかし、既に述べたように、LOCAクエンチ時の引張り荷重は燃料被覆管と制御棒案内管の収縮量の差によって生じる。それ故、クエンチ時における拘束収縮量を検討するには、この値(5.1mm)から制御棒案内管の収縮量を差し引かねばならない。

燃料棒は LOCA 時においても、燃料ペレット中に存在する核分裂生成物の壊変が続くために発熱し続ける。従って、全く発熱しない制御棒との間には当然ある程度の温度差が生じる。しかし、高温状態では放射による熱伝達効率が極めて高く、また、周囲の燃料棒と制御棒との間の間隔も小さい(2~3 mm)のために、その温度差はそれほど大きなものではないと言われている。

PWR に関して、この温度差を精度良く解析した例はないが、著者等が実施した模擬燃料集合体(7×7, 模擬制御棒4本を含む)⁽²⁹⁾破裂試験の結果が参考になる。この結果では、全ての燃料棒が全出力負荷後約84~90秒で破裂した(多くは88秒後に破裂)。この時点(88秒)における燃料被覆管の平均温度は795℃, 制御棒案内管の平均温度は643℃であり、その差は152℃であった。

高温になるほどその差は小さくなる傾向があり、110秒後の温度差は106℃であった(被覆管と案内管の平均温度は各々、871℃, 765℃)。高温での温度が小さくなるのはおそらく放射による伝熱効率が高くなるためである。また、BWR(8×8)に関する安全解析の結果によれば、大破断から103秒後(クエンチ直前)⁽³⁰⁾の燃料棒と water rod の温度は各々1000℃, 928℃であり、その差は72℃である。

以上の例を参考にすれば、クエンチ直前の燃料被覆管と制御棒案内管の温度差は100℃程度であると考えることができよう。

燃料被覆管と制御棒案内管の温度差を大き目に見積る方が安全側の評価になるので、その差を200℃と仮定して被覆管収縮量計算の場合と同様の計算をすると、制御棒案内管のクエンチ時収縮量は3.7 mmになる。拘束収縮量は被覆管の収縮量(5.1 mm)と案内管の収縮量(3.7 mm)の差であるから1.4 mmと考えることができる。それ故、本クエンチ実験における拘束条件(拘束収縮量: 1.5~2.6 mm)は十分安全側に設定されたものであると判断できる。

3.2 実験手順

本クエンチ実験の手順は、2.2で述べた非拘束条件下クエンチ実験の手順とほぼ同一であり、異なる点はクエンチ直前に引張り試験機の上部チャックを締めて模擬燃料棒上端も固定する点のみである。また、本実験ではクエンチ時に模擬燃料棒に生じる軸方向引張り荷重をロードセルによって測定した。その1例を図7に示す。荷重は加熱炉の電源を切った直後から増大するが、クエンチフロントの上昇に伴って急増する。この例では、拘束によって生じた100 kg程度の荷重で燃料棒が破断している。クエンチで破断しなかった模擬燃料棒については、その引張り強さを測定するために、そのままの状態で行張り試験した(最大荷重500 kg)。

試験した模擬燃料棒43本のうち9本を図19に模式的に示すように長さ15 mmのリング状試片に切断した。切断個数は1本当たり約20個である。また、各リング試片断面の金属組織を観察し、残存β相の厚さを測定した。また、リング試片の中心部分約5 mm角について水素分析を行った。

更に、一部のリング試片については、水素化物の同定を行うためにX線回折を実施した。使用したX線管球は銅対陰極管であり、印加電圧と管電流は各々、35 kV, 18 mAとした。

また、入射側にモノクロメーターを設置し、入射X線を $K\alpha_1$ に単色化した。回折線の検出には、NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用した。これを毎分0.04度づつステップ走査させた。

3.3 実験結果と考察

本実験に供した模擬燃料棒、すなわち一定の酸化(約10~36% ECR)を与えた後、拘束条件下でクエンチした模擬燃料棒の本数は43本であるが、それらの中でクエンチによって破損したものは24本であった。また、クエンチ実験後の引張り試験で破断したものは17本、破断しなかったものは2本^{*}であった。それらの数例を図20に写真で示す。No.34~36の3本はすべてクエンチによって破断した例である。非拘束条件下のクエンチ実験(第2章)では、数箇所破断する例が見られたが、本実験においては、破断位置は例外なく1箇所であった。また、破断形態もこの例で見られるように、すべて比較的単純な形態、すなわち円周方向のクラックに沿った破断形態であった。No.37は引張り試験でも破断しなかった例、No.38は引張り試験で破断した例である。クエンチ後の引張り試験で破断した模擬燃料棒の破断もすべて円周方向のクラックに沿った破断であった。

クエンチおよびクエンチ後の引張り試験で破断した模擬燃料棒の破断位置と酸化量(ECR)の関係を図21に示す。ここでいう破断位置とは破裂開口中心から破断箇所までの距離のことである。また、クエンチで破断した模擬燃料棒のデータは黒丸(●)で、引張り試験で破断した模擬燃料棒のデータは白丸(○)で示している。この結果から、クエンチによる破断に関しては、破裂開口部での破断は少なく、多く(約70%)は破裂開口中心から約20~60mm離れた位置で破断していることがわかる。また、酸化中の模擬燃料棒の軸方向温度分布から考えて、中心部分に比べると酸化量が著しく少ないと思われる位置(破裂開口中心から135~170mm離れた位置)で破断した例もある。このような傾向は非拘束条件下のクエンチによる破断で見られた傾向(図9)とほぼ一致している。一方、クエンチでは破断せずその後の引張り試験で破断した場合に関しては、破裂開口部での破断が約50%である。また、破裂開口部以外での破断も破裂開口中心から約60mm離れた位置までに限られており、酸化量が著しく少ないと思われる位置での破断例はない。

また、この結果はいずれの場合にも、酸化量と破断位置の間に特に相関はないことを示している。

図22に酸化量(ECR)と破断荷重の関係を示す。符号(●,○)の区別は図21の場合と同じである。クエンチによる破断と引張り試験による破断は160~180kgという荷重を境にしてその上下に明確に区分されている。このことはクエンチ時に生じた軸方向引張り荷重では破断しなかった模擬燃料棒がその後の引張り試験において約180kg以上の荷重で破断したことを示している。つまり、本クエンチ実験の拘束条件下で生じた軸方向引張り荷重は180kg以下であったと考えることができる。

破断しなかったもの^{*}：引張り試験機の最大荷重は500kgであり、それ以上の強度が残っている模擬燃料棒は破断しない。尚、本実験に用いたジルカロイ素管の軸方向引張り強さは約1500kgである。

3.1で述べたように、本実験の拘束条件はLOCAクエンチ時における拘束条件より安全側に設定したものである。それ故、LOCAクエンチ時の燃料被覆管に生じる軸方向引張り荷重は180kg以下であると予想することができる。また、図22は、拘束条件下のクエンチによる破断に関しては、酸化量(ECR)と破断荷重の間にはっきりした相関はないことを示している。

図23は本実験の結果を等温酸化温度と酸化時間で規定される failure map 上にプロットしたものである。クエンチによって破損した場合は●、破損しなかった場合を○で表示してある。また、図中の3本の実線は Baker-Just の式を用いて計算した3通り(15%、20%、40%)の酸化条件(ECR)に相当する。この結果はある程度の酸化条件を境にして破損領域が区分されることを示している。そして、試験した等温酸化温度範囲(約930℃~1310℃)に関しての破損・非破損限界酸化条件は20%程度であると考えることができる。

拘束条件下のクエンチによるジルカロイ被覆管の破損限界酸化条件を更に詳細に検討するために、同一の実験結果を等温酸化温度と酸化量(ECR)で規定される failure map 上にプロットしたのが図24である。非拘束条件下のクエンチに関する実験結果(図11)においては、約1050℃という等温酸化温度を境にしてその上下の温度範囲で破損限界酸化条件が異なる傾向が見られた。すなわち、約1050℃~1300℃における限界酸化条件は35~39% ECR であるのに対して、それ以下の温度範囲では等温酸化温度が低いほど限界酸化条件も低下する傾向が見られた。そして970℃で25% ECR まで酸化した被覆管はクエンチによって破損した。しかし、本実験の結果では同様の傾向は見られない。また、破損限界酸化条件は非拘束条件下のクエンチ実験で得られた結果とは大幅に異なる。図24は、24% ECR 以上酸化した燃料棒はすべて破損し、19% ECR 以下の酸化で破損した燃料棒は1本もないことを示している。従って、破損限界酸化条件は19~24% ECR 程度であると考えることができる。この値は安全評価指針における基準値(15% ECR)より十分大きな値である。更に、本クエンチ実験の拘束条件はLOCAクエンチ時の燃料被覆管拘束条件に比べて十分安全側、つまり大き目に設定されたものである。それ故、本実験の結果から、安全評価指針における基準値は十分な安全余裕を含むものであると判断することができよう。

図25にクエンチによって破断した模擬燃料棒の軸方向各位置における変態β相厚さと吸収水素量を示す。変態β相厚さは○、吸収水素量は●で、また、軸方向位置は破裂開口中心からの距離として示す。この模擬燃料棒の酸化条件は21% ECR (1050℃ - 30分)、破断時の軸方向引張り荷重は138kgであった。

破裂開口中心から約120mm離れた位置における変態β相厚さは580~600μmであり、試験前の被覆管の肉厚(620μm)とほとんど変わらない。このことはこれらの位置におけるふくれ変形と酸化の程度が小さいことを示している。また、変態β相厚さは、破裂開口位置で最小値となり、破裂開口中心から離れるほど厚くなるというV字型の分布を示すことがわかる。この例では、破裂開口位置^{*}における変態β相厚さは290μm程度である。変態β相の厚さは被覆の肉厚から酸化膜の厚さと安定化α相の厚さを差し引いた値である。従って、一定の酸化

破裂開口位置^{*}：正確には、図19に示す燃料棒切断図からわかるように、破裂開口中心から約7mm離れた位置である。

を与えたジルカロイ被覆管の変態 β 相の厚さは計算で求めることができる。290 μm という値は、この模擬燃料棒の酸化条件(1050 $^{\circ}\text{C}$ -30分)を川崎等⁽¹⁹⁾が求めた実験式：

$$\xi^2 = 3.06 \times 10^7 \cdot t \cdot \exp(-39000/RT)$$

ξ ：酸化膜の厚さ+安定化 α 相の厚さ(μm)

に代入して求めた値340 μm ^{**}より15%程度小さい値である。この違いはふくれ変形に伴う被覆管の薄肉化に起因するものであろう。

一方、吸収水素量は、破裂開口中心から上下に約70mm離れた位置がピークとなるM字型の分布を示している。ピーク位置での吸収水素量は約3500wt.ppmである。また、破裂開口部近傍における吸収量は極端に少ない。

この模擬燃料棒の破断位置は破裂開口中心から下方に55mm離れた位置である。この位置における変態 β 相の厚さは約370 μm 、吸収水素量は約2200wt.ppmと推定できる。この結果は、模擬燃料棒の破断は変態 β 相の厚さが最小の位置すなわち酸化量が最大である位置や吸収水素量が最大である位置で生じたのではなく、酸化の程度が比較的大きく吸収水素量も多い位置で生じたことを示している。既に述べたように、本実験では破裂開口中心から約20~60mm離れた位置で破断する場合が多かった(図21)。この範囲で破断した5例について、変態 β 相厚さと吸収水素量の軸方向分布を調べたが、そのすべてが図25に示される結果と同じ傾向すなわち破断位置における酸化程度は比較的大きく吸収水素量も多いという傾向を示した。

クエンチで破断した模擬燃料棒24本のうち4本は破裂開口部で破断した。その一例について、軸方向各位置における変態 β 相厚さと吸収水素量を図26に示す。この模擬燃料棒の酸化条件は20%ECR(993 $^{\circ}\text{C}$ -60分)、破断時の軸方向引張り荷重は77kgであった。変態 β 相厚さの分布は、図25に示す例と同様に、破裂開口部近傍で薄く(220~280 μm)、破裂開口中心から離れるほど厚くなるというV字型の分布を示している。一方、吸収水素量の分布は、変態 β 相厚さの分布とは全く逆の傾向、つまり破裂開口部で最大(1500wt.ppm)、破裂開口部から離れるほど減少するという逆V字型の分布を示している。従って、この場合の破断は酸化程度と吸収水素量が共に最大である位置で生じたことになる。クエンチ時の破断が破裂開口部で生じた他の1例についても同様の測定を行ったが、結果はこの場合と全く同じ傾向を示した。破裂被覆管の内面における水素吸収のピーク位置は破裂開口部からある程度離れた位置である場合が多い(本実験では測定した9例中7例が該当する)。しかし、図26に示す例のように、破裂開口部近傍でピークになる場合もある。そして、このような場合には、破裂開口部における酸化の程度と水素吸収量が共に最大になり機械的性質の劣化も一番大きいから、破裂開口部で破断すると考えることができる。

本クエンチ実験では、少数ではあるが、破裂開口部からかなり離れた位置で破断した例もあった(図21)。そのうちの一例について、同様の測定をした結果を図27に示す。この模擬燃料棒の酸化条件は約20%ECR(1003 $^{\circ}\text{C}$ -50分)、破断時の軸方向引張り荷重は43kgであった。この場合にも変態 β 相厚さの軸方向分布は、図25、26に示す例と同様に、破裂

340 μm ^{**}：試験前の被覆肉厚(620 μm)-2 \times ξ 、破裂開口部では内外両面の酸化量はほぼ等しい。

開口部近傍で最も薄く(150 μm)、破裂開口中心から離れるほど厚くなるというV字型の分布を示している。一方、吸収水素量は、破裂開口部近傍では非常に少なく、破裂開口中心から120~150mm離れた位置でピークを示している。特に、破裂開口中心から下方に150mm程度離れた位置の吸収量は極めて多く、8000~9000wt. ppmである。

この模擬燃料棒は破裂開口中心から下方に135mm離れた位置で破断した。破断位置における変態 β 相の厚さは520 μm 程度であり、この値は破裂開口位置における厚さの約3.5倍である。従って、破断位置における酸化の程度は破裂開口部近傍と比較すると大幅に少ないと言える。一方、この位置における吸収水素量は8500wt. ppmである。それ故、この模擬燃料棒の破断に関しては、被覆中に吸収された水素が支配的な役割を演じたと考えることができる。

破裂開口中心から下方に120mm離れた位置における被覆管断面の一部を図28に写真で示す。図27に示す結果から、この位置における吸収水素量は約6200wt. ppmであると推定される。(B)は(A)の金属相領域を2倍に拡大したものである。写真からわかるように、この位置における酸化膜の厚さは約40 μm である。酸化膜の厚さから酸化温度を計算することができる。すなわち、前述の酸化膜の厚さを求める実験式に酸化時間と酸化膜の厚さを代入することによって等温酸化温度が求められる。この位置における等温酸化温度を計算すると約920 $^{\circ}\text{C}$ となる。ジルカロイには約810 $^{\circ}\text{C}$ ~970 $^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で($\alpha + \beta$)2相混合領域が存在するので、この断面の金属相は変態 β 相と α 相の2相から構成されていると考えることができる。それ故、写真(B)に見られる結晶粒は変態 β 相結晶粒であり、粒界部分にわずかに見られる相は α 相結晶であろう。また、最大粒径が200~300 μm にも達する粗大な変態 β 相結晶中には線状の析出物が観察される。この析出物は水素化物であると思われる。

水素化物を同定するために、一部の試料についてX線回折を行った。回折試料はリング試片を潰した破片の破断面を5~6枚並べたものであり、X線はその破断面に対して入射させた。測定で得られた代表的な回折パターンを図29に示す。測定試料の水素含有量は8500wt. ppmである。回折パターンには6本のピークが認められる。1本は28.2 $^{\circ}$ (2θ)付近に見られるピークであり、これは $\text{ZrO}_2(111)$ からの回折であると考えられる。この試料の酸化の程度は少ない(酸化膜厚さ:20 μm)のでピークも小さい。また、31.7 $^{\circ}$ 、34.5 $^{\circ}$ 、36.3 $^{\circ}$ に見られる3本のピークは各々、 $\alpha\text{-Zr}(100)$ 、 $\alpha\text{-Zr}(002)$ 、 $\alpha\text{-Zr}(101)$ からの回折線である。そして、残り2本ピークは $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ および $\delta\text{-ZrH}_x(200)$ からの回折線である。測定は38 $^{\circ}$ (2θ)より高角側についても行ったが、 $\alpha\text{-Zr}$ 以外からの回折線と思われるものが3本検出された。そのいずれもが $\delta\text{-ZrH}_x$ からの回折線^{*}であった。従って、ジルカロイ中に吸収された水素は冷却過程で $\delta\text{-ZrH}_x$ として析出すると考えることができる。

図30に、軸方向位置の異なる5個の試料についてのX線回折パターンのうち32.5 $^{\circ}$ (2θ)付近のピークを比較して示す。このピークは $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ からの回折線によるものである。破裂開口中心から約45mm離れた位置から採取した試料E(吸収水素量:250wt. ppm)の場合にはピークが認められない。比較的低温におけるジルコニウム中の水素固溶度は非常に小さ

$\delta\text{-ZrH}_x$ からの回折線^{*} : $\delta\text{-ZrH}_x$ からの回折線として検出されるものの中では $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ に対応するものが最大であり、他はいずれも小さく、しかも吸収水素量が非常に多い試料でしか検出されなかった。

く(300℃で65~70wt.ppm, 室温では10wt.ppm以下), 固溶限以上に吸収された水素は水水中への急冷のように冷却速度が速い場合にも冷却中に析出することが知られている。従って, 試料E中にも水素化物が析出していると思われる。明確な回折ピークが見られないのは, 水素化物が量的に少ないからであろう。それ以外の試料については, いずれの場合にも明確なピークが認められる。また, ピークの大きさは吸収水素量の多い試料ほど大きくなる傾向がある。特に破断位置から採取した試料A(吸収水素量: 8500wt.ppm)で見られる回折ピークは非常に大きい。

ピークの大きさと吸収水素量の間の一元的な比例関係は認められないが, 吸収水素量の多い試料ほどピークが大きくなるという傾向は一貫しているので, ピークの大きさを比較することによって吸収水素量の大小を検討することは可能であろう。

酸化したジルカロイ管の金属組織のどの部分に水素化物が含まれているのかを調べるために, 試料A(吸収水素量: 8500wt.ppm)の破片の内表面にX線を入射させ, $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ からの回折線の強度を測定した。この測定は4通りの試片, すなわち, (i)内面酸化膜をつけたままの破片, (ii)この破片から内面酸化膜のみを削り取った試片, (iii)安定化 α 相も完全に削り取った試片, (iv)さらに変態 β 相部分も200 μm 程度削り取った試片, について実施した。この測定で得られた結果を図31に示す。図31は $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ からの回折線の相対強度と被覆内面からの深さの関係を示すものである。ここでいう相対強度とは, 各測定結果について $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ に対応するピークの面積を $\alpha\text{-Zr}(002)$ と $\alpha\text{-Zr}(101)$ に対応するピーク面積の和で除した値($S_{\delta\text{-ZrH}_x(111)} / S_{\alpha\text{-Zr}(002)} + S_{\alpha\text{-Zr}(101)}$)である。このような操作は, 各測定で得られた $\alpha\text{-Zr}$ からの代表的な回折線(図29参照)の強度が一定ではなかったので, $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ からの回折強度を一定の条件で比較できるようにするために行った便法であり, 一般に用いられる手法である。

また, この測定のような面走査(surface scanning)で得られる情報には, 測定面からの情報ばかりではなく, ある程度下層の情報も含まれる。しかし, 下層からの情報(回折パターン)は極めて薄い表面層からのものに限られるので, 図31の各データは測定面に存在する $\delta\text{-ZrH}_x$ の相対的な量を示していると考えて差し支えないであろう。回折パターンが試料の薄い表面層からの反射のみによって得られるものであることは以下のような概算によって容易に予想できる。

厚さ x の物質を通過した後のX線強度 I_x は, 入射X線の強度を I_0 とすれば,

$$I_x = I_0 e^{-\mu x} \quad (1)$$

μ : 線吸収係数

で表わせることが知られている。吸収係数はX線の波長の関数であり, 密度 ρ に比例する。従って, μ/ρ (質量吸収係数)は物質固有の値となり, 種々の物質についてその値が求められている。 μ/ρ を用いて表現すると式(1)は,

$$I_x = I_0 e^{-(\mu/\rho)\rho x} \quad (2)$$

となる。X線の波長が $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda = 1.542\text{A}$)である場合のジルコニウムの質量吸収係数は $143\text{cm}^2/\text{g}$ である。また, 密度は $6.5\text{g}/\text{cm}^3$ である。これらの値を式(2)に代入すると,

$$I_x/I_0 = e^{-929.5x} \quad (3)$$

が得られる。ジルカロイと ZrO_2 の密度 (各々, $6.55, 5.73 \text{ g/cm}^3$) はジルコニウムの密度と大幅には変わらないので, 酸化ジルカロイ試料についての概算に式(3)を用いることは妥当であろう。

試料表面から深さ $1 \mu\text{m}$ のところにある面から反射される X 線 ($2\theta : 32.5^\circ$) の試料中における通過距離 (飛程) は約 $6.9 \mu\text{m}$ (往復) である。式(3)にこの値 ($6.9 \times 10^{-4} \text{ cm}$) を代入すると, $I_x / I_0 = 0.53$ と計算される。つまり, 試料表面から $1 \mu\text{m}$ 離れた位置にある面からの回折線の強度は試料表面からの回折線の強度の 53% に減少すると考えることができる。また, 厚さ $5 \mu\text{m}$ の場合には 5% , $10 \mu\text{m}$ の場合には 0.2% と計算される。

本実験で得られた回折パターンに, 試料表面からどの程度まで深い位置からの情報が含まれているかということについては, 検出器の検出能力やバックグラウンドレベルの大小による影響が必ずしも明らかではないので, 断定はできない。しかし, 上記の概算結果から, 情報は極めて薄い表面層 (数 μm 程度) からのものに限られると考えることができよう。

図 3 1 に示す相対強度は酸化膜のみを削り取った試料, つまり表面層が安定化 α 相である試料の回折強度を 1 とした場合の値である。内面酸化膜をつけたままの試料の測定においては, $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ からの回折線は全く認められなかった。すなわち相対強度は 0 である。従って, 酸化膜中には $\delta\text{-ZrH}_x$ はほとんど存在しないと考えられる。また, 安定化 α 相を完全に削り取った試料の相対強度は 1.4, そして変態 β 相も $200 \mu\text{m}$ 程度削り取った試料の相対強度は 1.1 であった。この結果から, 内面酸化に伴ってジルカロイ被覆中に吸収された水素の厚さ方向の濃度分布を知ることができる。水素濃度が一番高いのは変態 β 相中で内面側の安定化 α 相に近い部分である。また, 安定化 α 相中にもある程度の水素は存在するが, 被覆肉厚の大きな割合は変態 β 相によって占められるので, 吸収された水素の大部分は変態 β 相中に存在すると結論できる。

4. 結 論

軽水炉 LOCA クエンチ時の燃料挙動を検討し、燃料被覆管のクエンチによる破損限界酸化条件を求めるために、非拘束条件下および拘束条件下での模擬燃料棒破裂・酸化・クエンチ実験を実施した。実験で得られた主要な結果は以下のようにまとめることができる。

(1) 非拘束条件下のクエンチによるジルカロイ被覆管の破損限界酸化条件は、等温酸化温度 1050～1300℃に対して、35～38% ECR であった。この値は同じ温度範囲について Chung 等が求めた結果 (34～40% ECR) とほぼ一致している。より低温側では、限界酸化条件が低下する傾向が見られた。この現象は、950～1000℃程度の温度範囲における長時間酸化で、酸化膜に気孔やクラックが生じることによる酸化反応速度増大に起因すると考えられる。

(2) 拘束条件下のクエンチによる被覆管の破損限界酸化条件は、等温酸化温度 950～1300℃に対して、19～24% ECR であった。

(3) 拘束条件下のクエンチで被覆管に生じる軸方向引張り荷重は 180 kg 以下であった。

(4) 酸化被覆管は、多くの場合、破裂開口部から 10～60 mm 程度離れた位置で破断した。

(5) 拘束条件下のクエンチによる被覆管の破断はすべて円周方向のクラックに沿った破断であった。一方、非拘束条件下のクエンチでは、被覆管の破断形態はより複雑であった。

(6) 拘束条件下のクエンチによる被覆管の破断は、内面酸化の程度が比較的大きく吸収水素量も多い位置で生じる場合が多かった。従って、被覆の破断には内面酸化に伴って吸収される水素が大きな役割を演じると考えられる。

(7) 被覆中に吸収された水素は δ -ZrH_x として析出していた。また、吸収された水素の多くは変態 β 相部分に存在していた。

(8) 本実験の結果から、現行の安全評価指針における基準値 (1200℃, 15% ECR) は安全側に設定されたものであると判断できる。

謝 辞

本研究における水素分析を担当して下さった分析センター・星野 昭，磯 修一の両氏に、また、X線分析に協力して下さった固体物理第3研究室・本橋治彦氏に心から感謝します。

4. 結 論

軽水炉 LOCA クエンチ時の燃料挙動を検討し、燃料被覆管のクエンチによる破損限界酸化条件を求めるために、非拘束条件下および拘束条件下での模擬燃料棒破裂・酸化・クエンチ実験を実施した。実験で得られた主要な結果は以下のようにまとめることができる。

(1) 非拘束条件下のクエンチによるジルカロイ被覆管の破損限界酸化条件は、等温酸化温度 1050～1300℃に対して、35～38% ECR であった。この値は同じ温度範囲について Chung 等が求めた結果(34～40% ECR)とほぼ一致している。より低温側では、限界酸化条件が低下する傾向が見られた。この現象は、950～1000℃程度の温度範囲における長時間酸化で、酸化膜に気孔やクラックが生じることによる酸化反応速度増大に起因すると考えられる。

(2) 拘束条件下のクエンチによる被覆管の破損限界酸化条件は、等温酸化温度 950～1300℃に対して、19～24% ECR であった。

(3) 拘束条件下のクエンチで被覆管に生じる軸方向引張り荷重は 180 kg 以下であった。

(4) 酸化被覆管は、多くの場合、破裂開口部から 10～60 mm 程度離れた位置で破断した。

(5) 拘束条件下のクエンチによる被覆管の破断はすべて円周方向のクラックに沿った破断であった。一方、非拘束条件下のクエンチでは、被覆管の破断形態はより複雑であった。

(6) 拘束条件下のクエンチによる被覆管の破断は、内面酸化の程度が比較的大きく吸収水素量も多い位置で生じる場合が多かった。従って、被覆の破断には内面酸化に伴って吸収される水素が大きな役割を演じると考えられる。

(7) 被覆中に吸収された水素は $\delta\text{-ZrH}_x$ として析出していた。また、吸収された水素の多くは変態 β 相部分に存在していた。

(8) 本実験の結果から、現行の安全評価指針における基準値(1200℃, 15% ECR)は安全側に設定されたものであると判断できる。

謝 辞

本研究における水素分析を担当して下さった分析センター・星野 昭, 磯 修一の両氏に、また、X線分析に協力して下さった固体物理第3研究室・本橋治彦氏に心から感謝します。

参 考 文 献

- (1) Hobson, D. O. and Rittenhouse, P. L. : ORNL-4758, (1972).
- (2) Hobson, D. O. : CONF-730304, 274~288, (1973).
- (3) Meservey, R. H. and Harzel, R. : IN-1389, (1970).
- (4) Junke, E. F. and White, J. F. : GEMP-731, (1970).
- (5) 川崎 了, 古田照夫, 橋本政男 : JAERI-M6181, (1975).
- (6) 原子炉安全専門審査会 : 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針, (1975).
- (7) Uetsuka, H., Furuta, T. and Kawasaki, S. : J. Nucl. Sci. Technol., 18(9), 705~717, (1981).
- (8) 上塚 寛, 古田照夫, 川崎 了 : JAERI-M9445, (1981).
- (9) 上塚 寛, 古田照夫, 川崎 了 : JAERI-M9681, (1981).
- (10) Furuta, T., Uetsuka, H. and Kawasaki, S. : J. Nucl. Sci. Technol., 18(10), 802~810, (1981).
- (11) Hesson, J. C. et al. : ANL-7609, (1970).
- (12) Duncan, J. D. and Leonard, J. E. : GEAP-13174, (1971).
- (13) Scatena, G. J. : NEDO-10674, (1972).
- (14) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : NUREG/CR-1344 (ANL-79-48), (1980).
- (15) Komatsu, K. et al. : Proceedings of the Specialists' Meeting on Safety Aspect of Fuel Behavior in Offnormal and Accident Conditions, OECD/NEA, Espoo, Finland, (1980).
- (16) 川崎 了他 : 未発表データ.
- (17) 村主 進, 斯波正誼 : 原子炉安全工学 (第7章), 日刊工業新聞社, (1975).
- (18) Baker, L. and Just, L. C. : ANL-6548, (1962).
- (19) Kawasaki, S., Furuta, T. and Suzuki, M. : J. Nucl. Sci. Technol., 15(8), 589~596, (1978).
- (20) Leistikow, S. et al. : KfK 2587, (1978).
- (21) Pawel, R. E. et al. : J. Electrochem. Soc., 126(7), 1105~1111, (1979).
- (22) Brown, A. F. and Healey, T. : J. Nucl. Mater., 88(1), 1~6, (1980).
- (23) Urbanic, V. F. and Heidrick, T. R. : J. Nucl. Mater., 75(2), 251~261, (1978).
- (24) Schanz, G. and Leistikow, S. : Proceedings of ANS/ENS Topical Meeting on Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior, 2-342, Sun Valley, Idaho, (1981).

- (25) USNRC : TREE-NUREG-1005, (1976).
- (26) Mellinger, G. B. et al. : EPRI NP-524, (1977).
- (27) Scott, D. B. : WCAP-3269-41, (1965).
- (28) 泉 文男, 中村仁一 : JAERI-M82-132, (1982).
- (29) 川崎 了他 : 未発表データ (模擬燃料集合体破裂試験 No. 24).
- (30) 新谷文将 : 私信
- (31) Kearns, J. J. : J. Nucl. Mater., 27, 64~72, (1968).
- (32) Mishima, Y., Ishino, S. and Nakajima, S. : J. Nucl. Mater., 27, 335~344, (1968).

Table 1 Chemical composition of zircaloy-4 cladding used
in experiment (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.

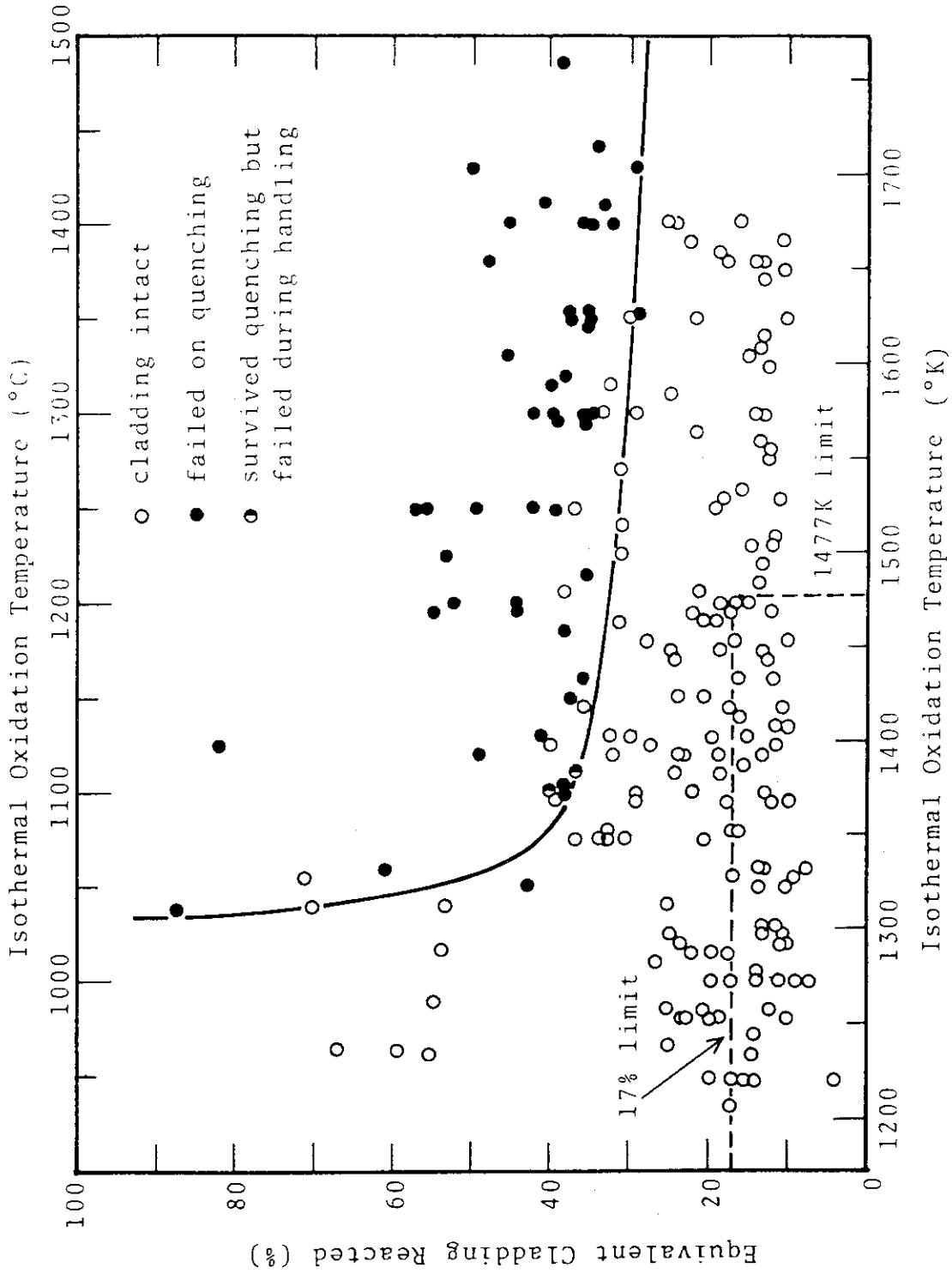


Fig. 1 Failure map for zircaloy-4 cladding by thermal shock or normal handling. (ANL-79-48)

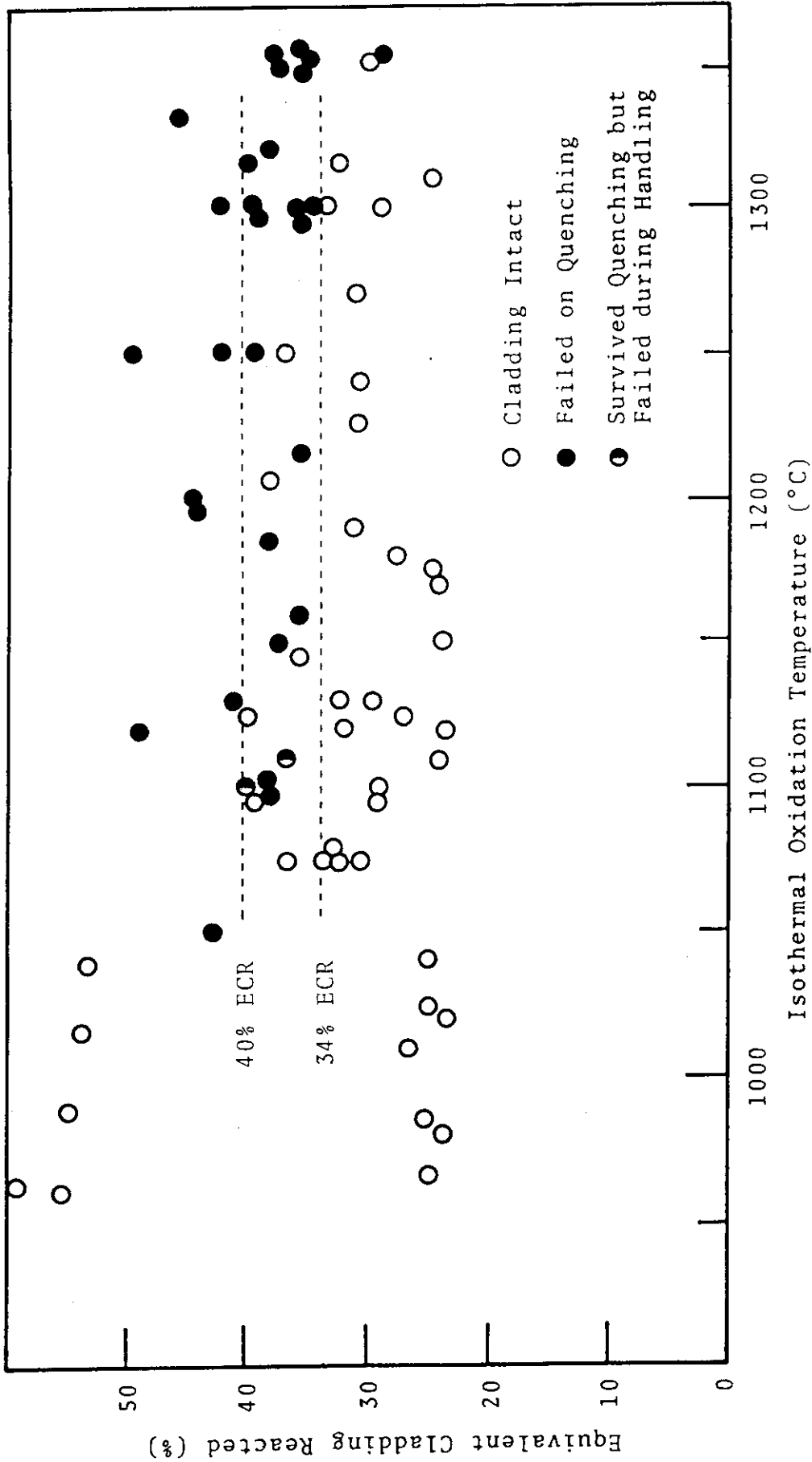


Fig. 2 Failure map for zircaloy-4 cladding by thermal shock under non-restrained condition relative to the equivalent-cladding-reacted parameter and isothermal oxidation temperature after rupture in steam. (Chung et al. ANL)

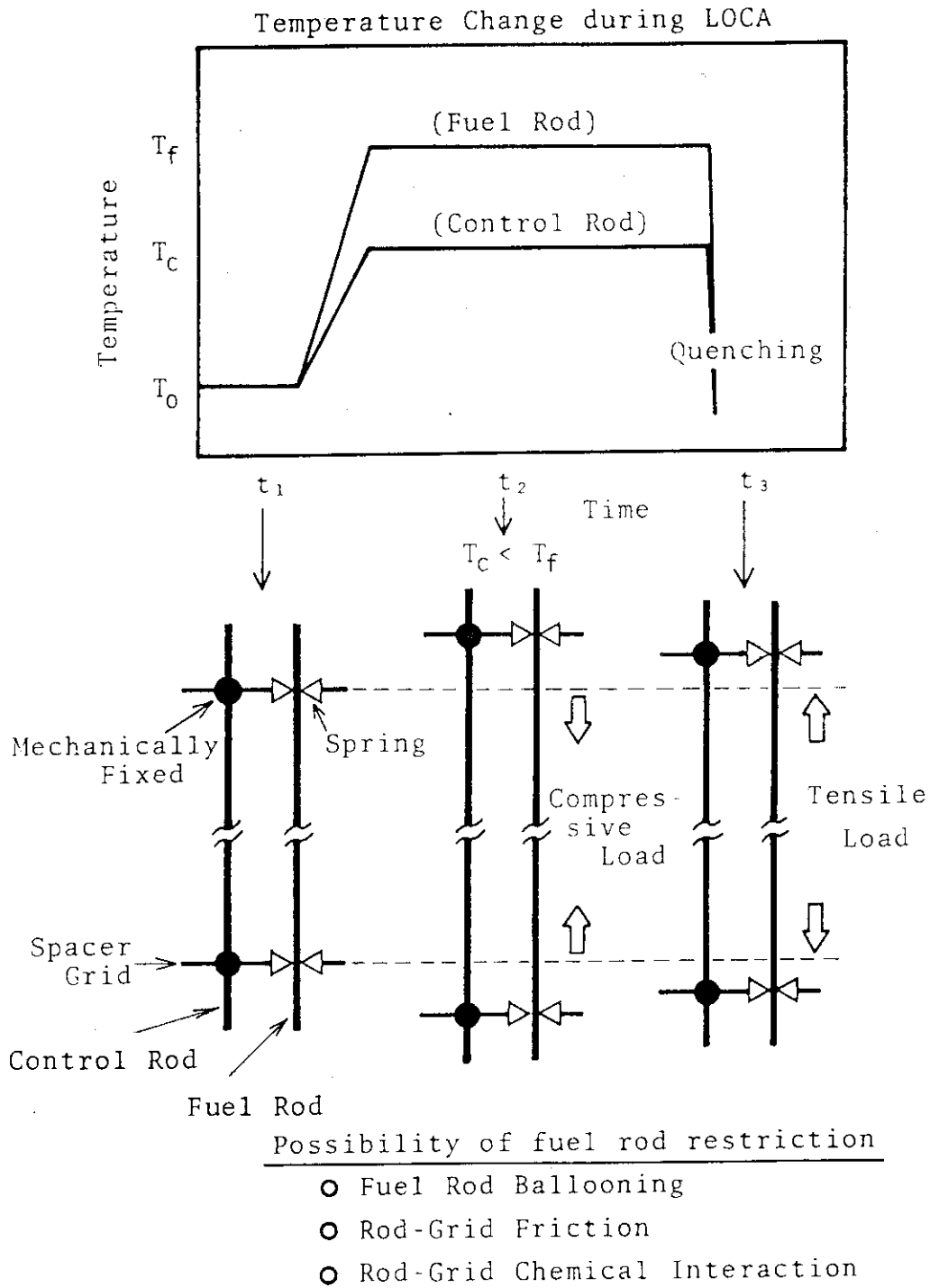


Fig . 3

Schematic illustration of temperature change during LOCA and possibility of fuel rod restriction

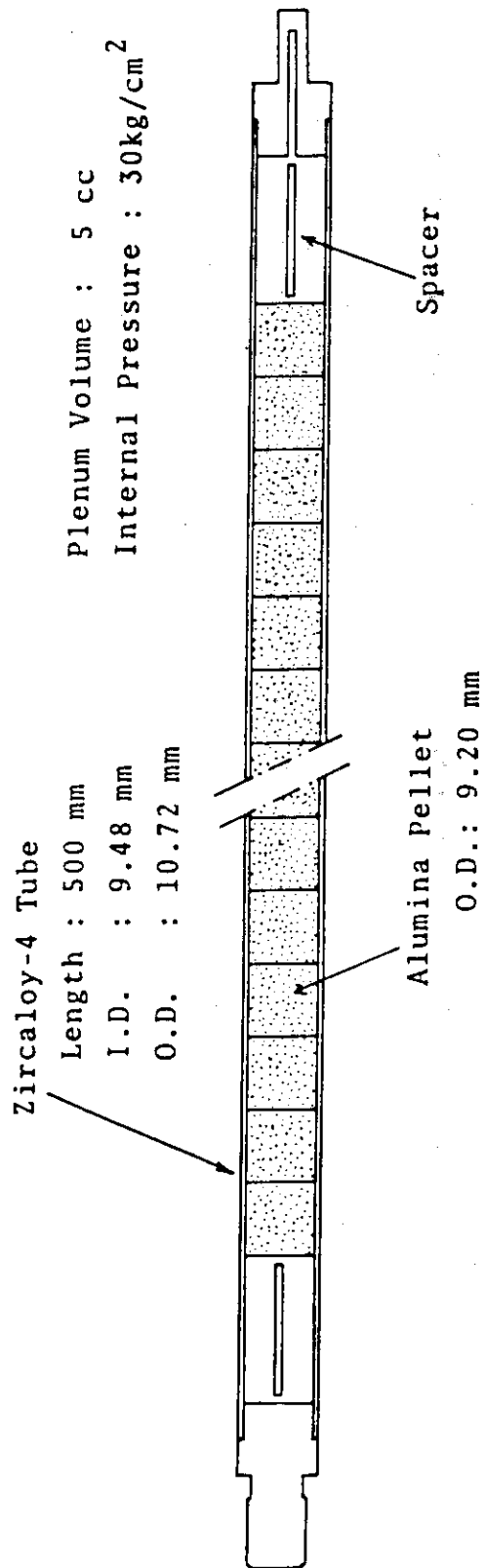


Fig.4 Schematic illustration of a simulated fuel rod

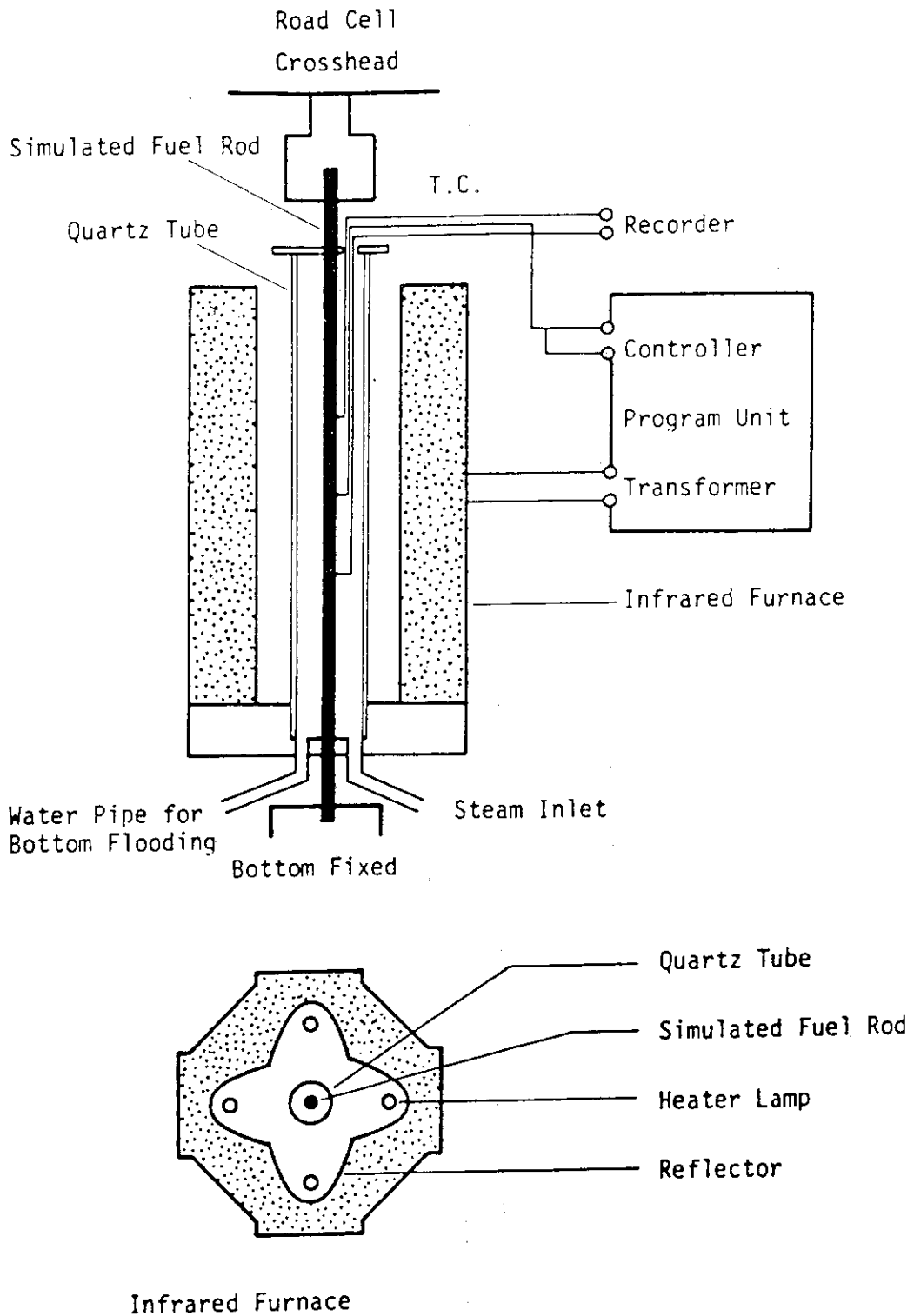


Fig. 5 Schematic illustration of an apparatus

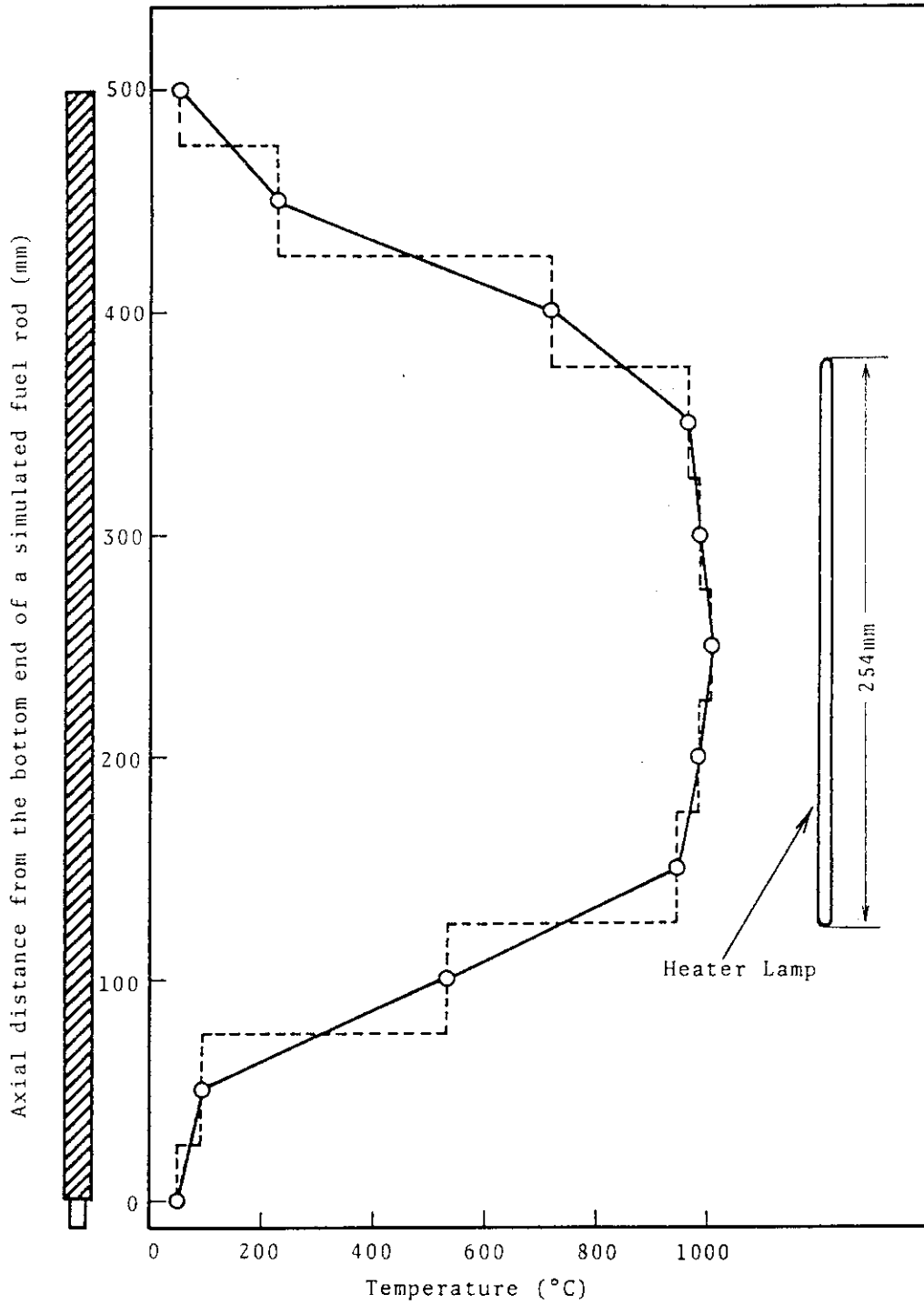


Fig. 6 Typical temperature distribution of a heating rod as a function of axial distance

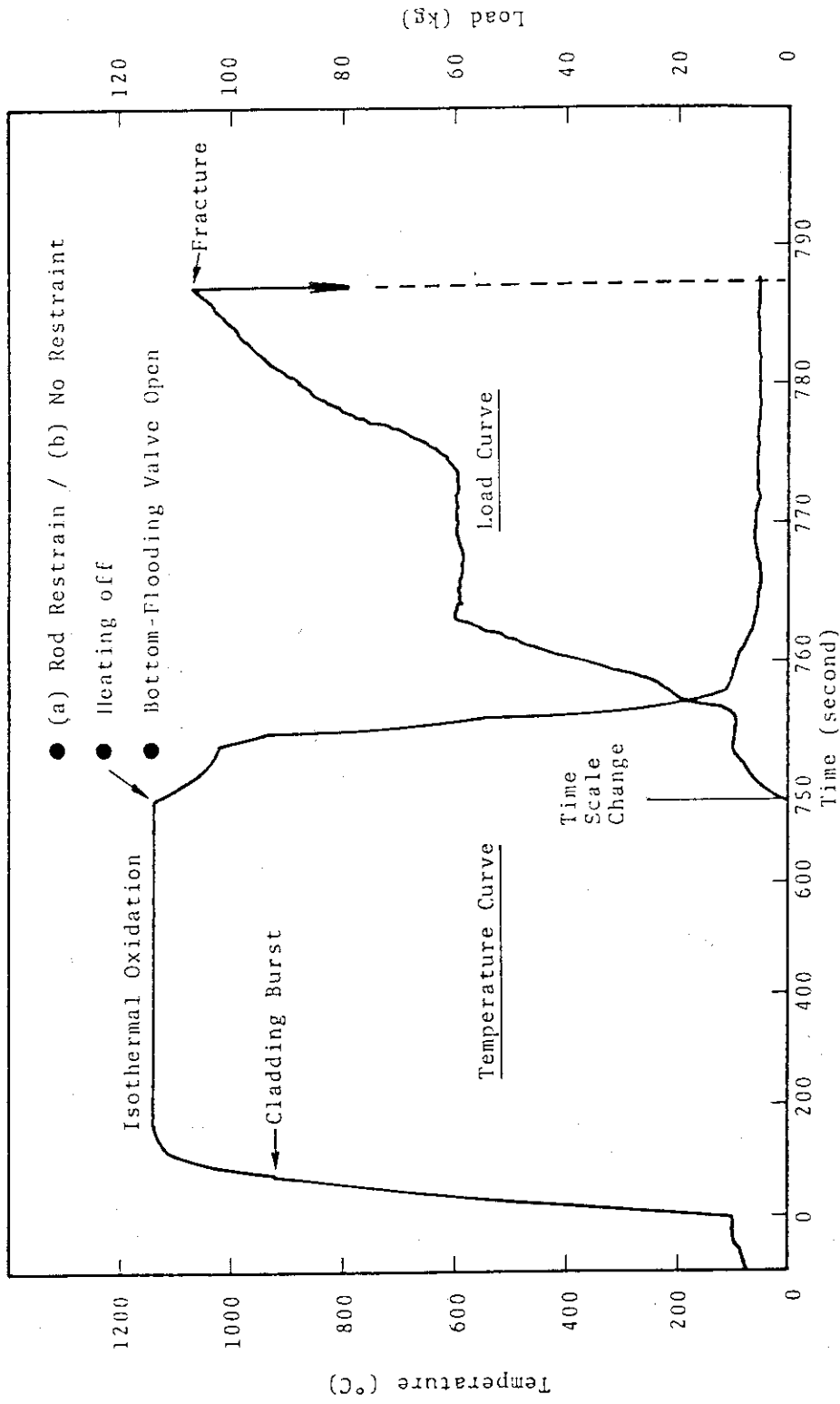


Fig. 7 Temperature-Time and Load-Time Curves from a Tube-burst/Thermal-shock Test

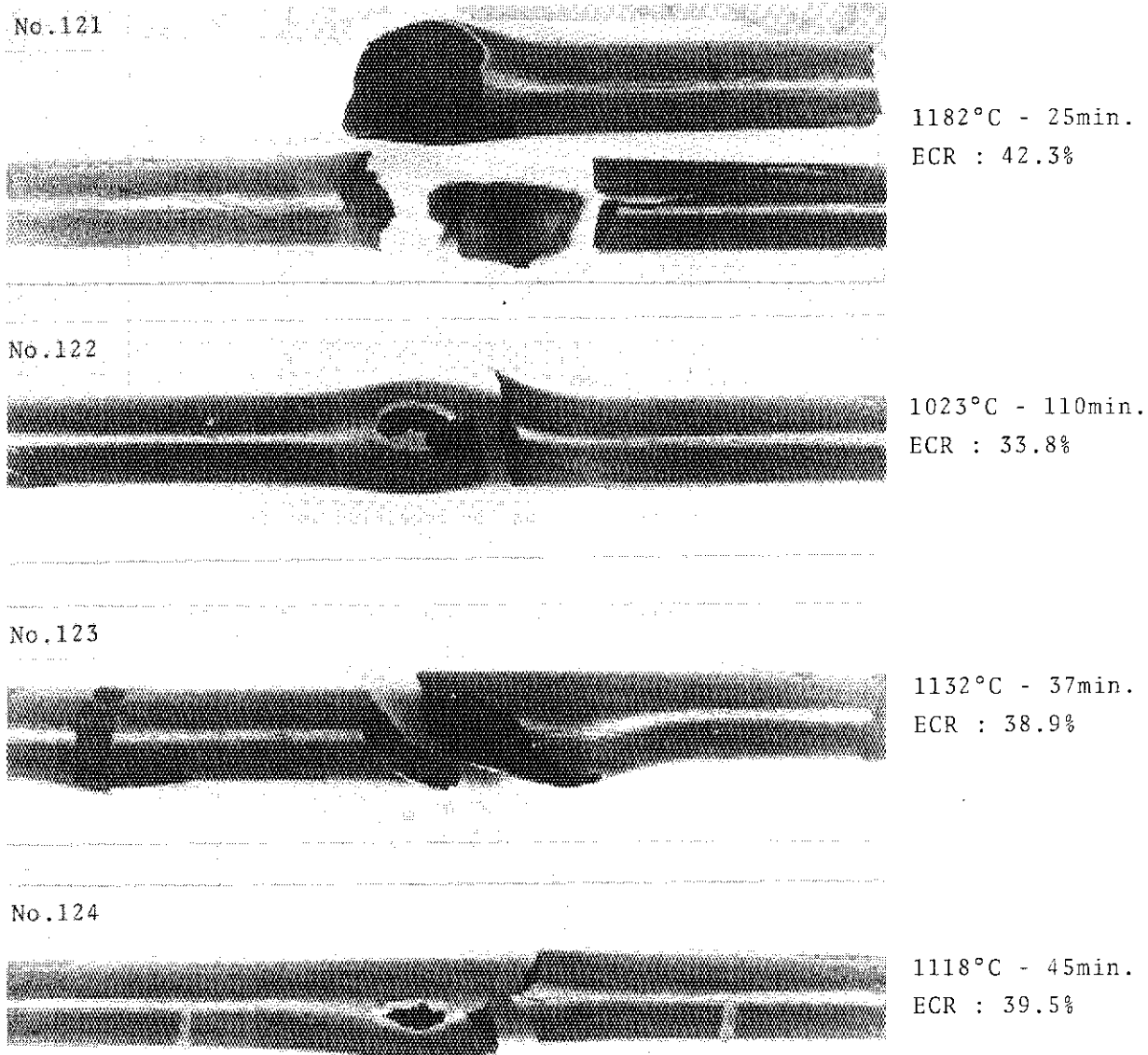


Fig.8 Zircaloy-4 cladding tubes failed on quenching under non-restrained condition.

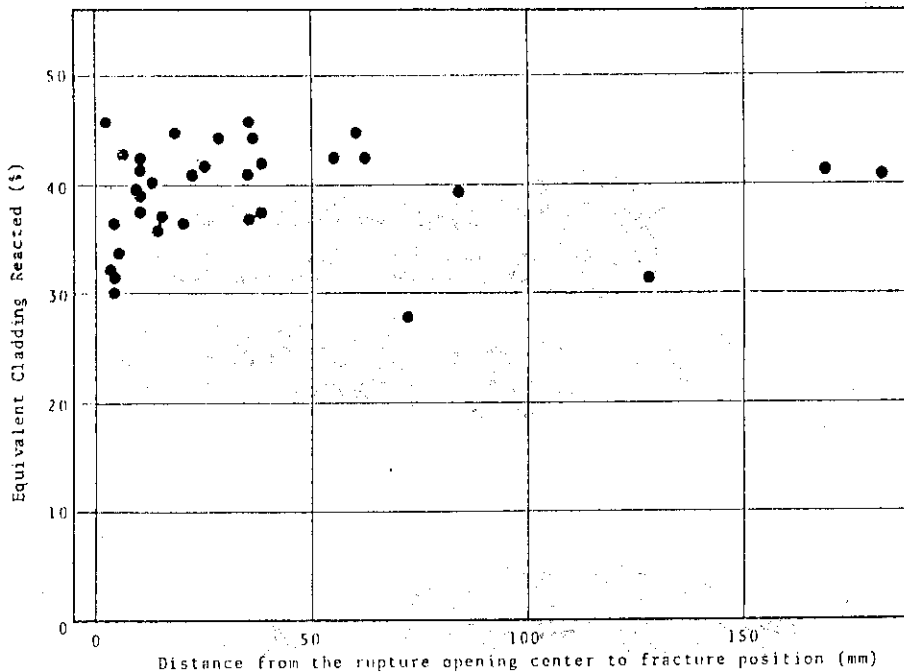


Fig. 9 Correlation between the oxidation condition and fracture position

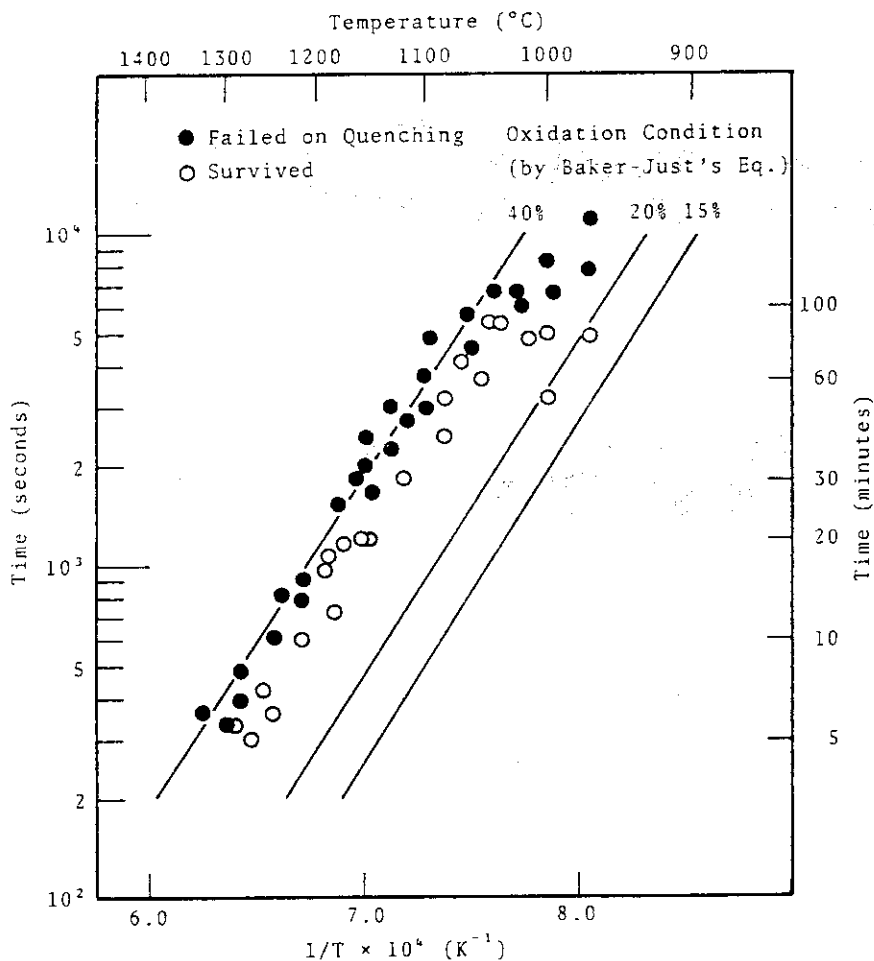


Fig. 10 Failure map for Zircaloy-4 cladding by thermal shock under non-restrained condition relative to the time and temperature of isothermal oxidation after rupture in steam

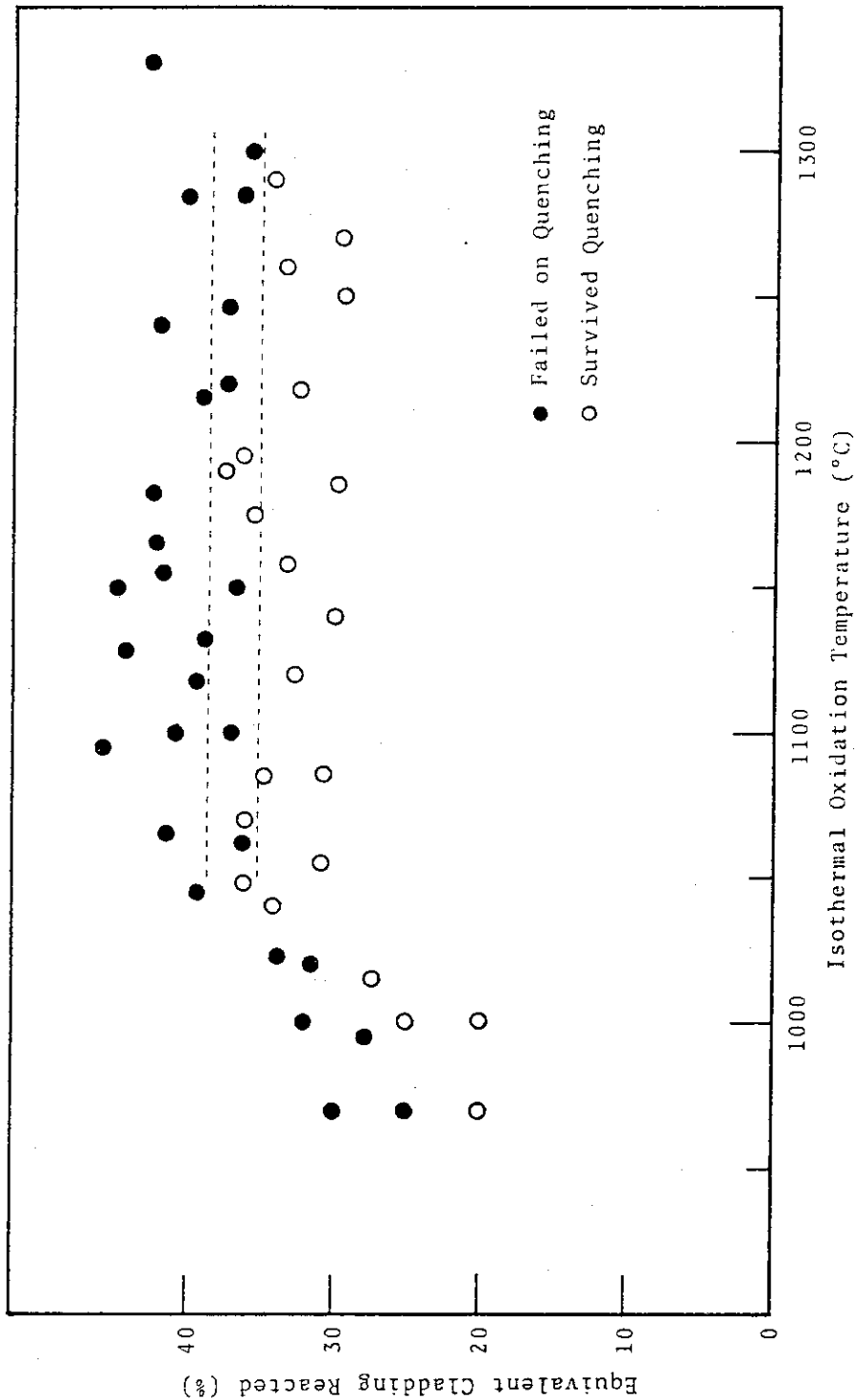


Fig.11 Failure map for zircaloy-4 cladding by thermal shock under non-restrained condition relative to the equivalent-cladding-reacted parameter and isothermal oxidation temperature after rupture in steam.

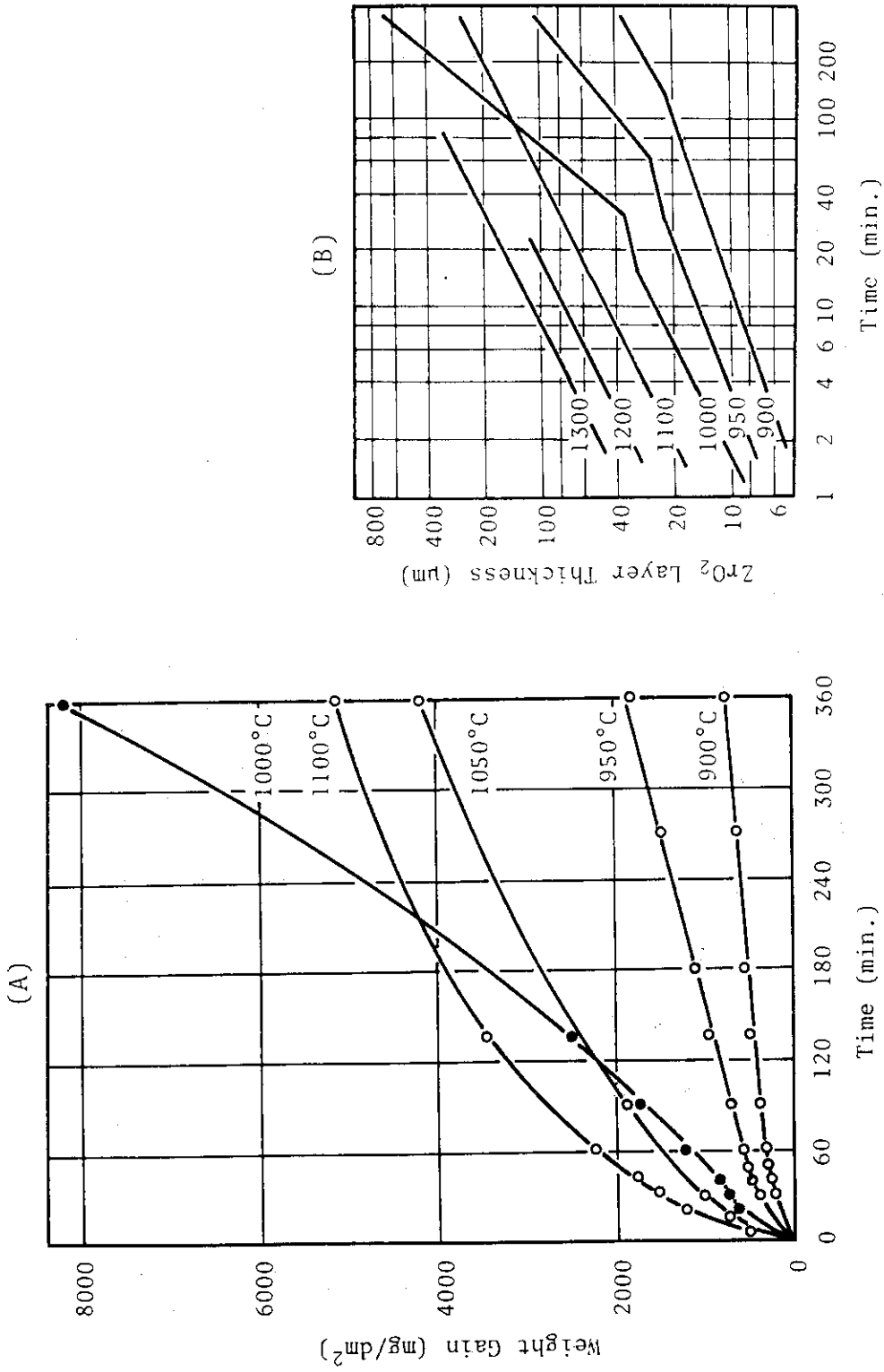


Fig.12 Zircaloy-4 High Temperature Oxidation Kinetics During Extended Steam Exposure. (Schanz and Leistikow, KfK)

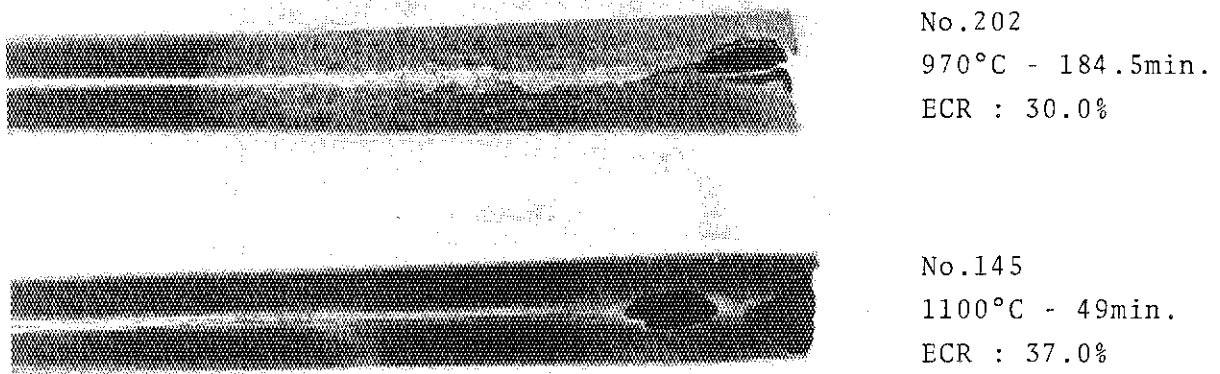


Fig.13 Visual appearance of Zircaloy-4 cladding tubes oxidized at different temperature

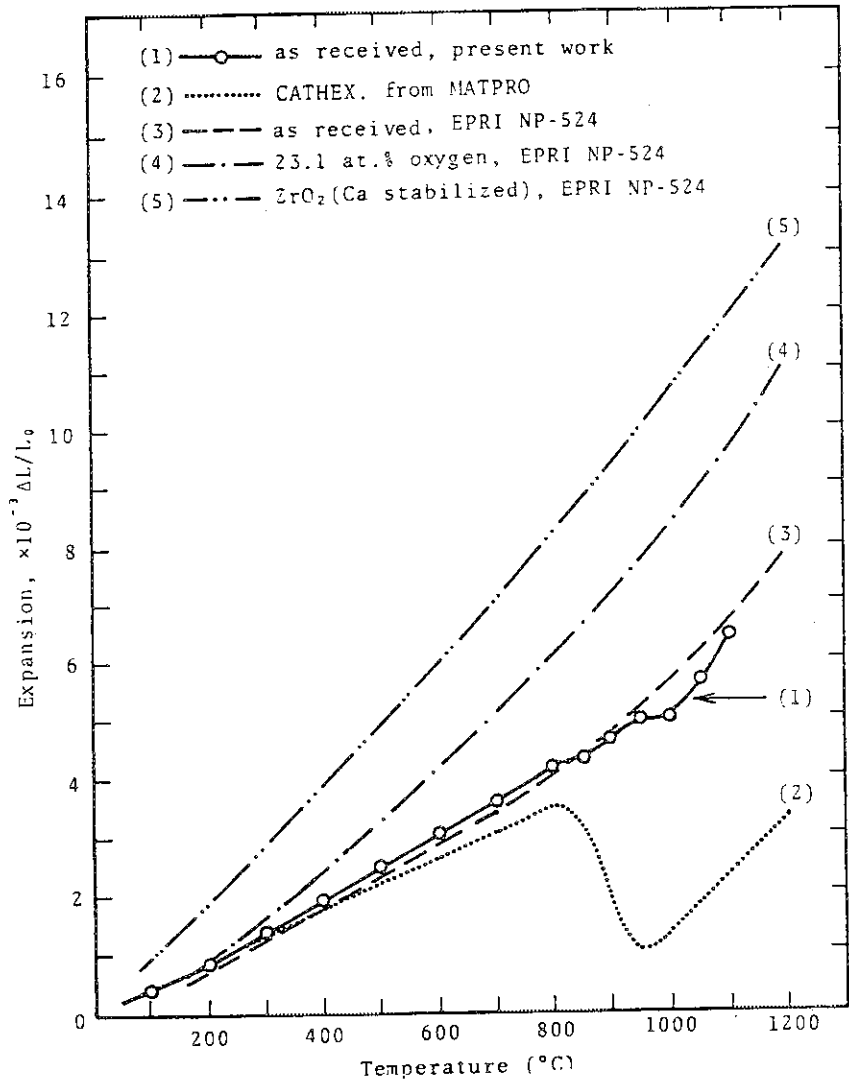


Fig.14 Thermal expansion curves for Zircaloy-4 and ZrO₂, (axial direction)

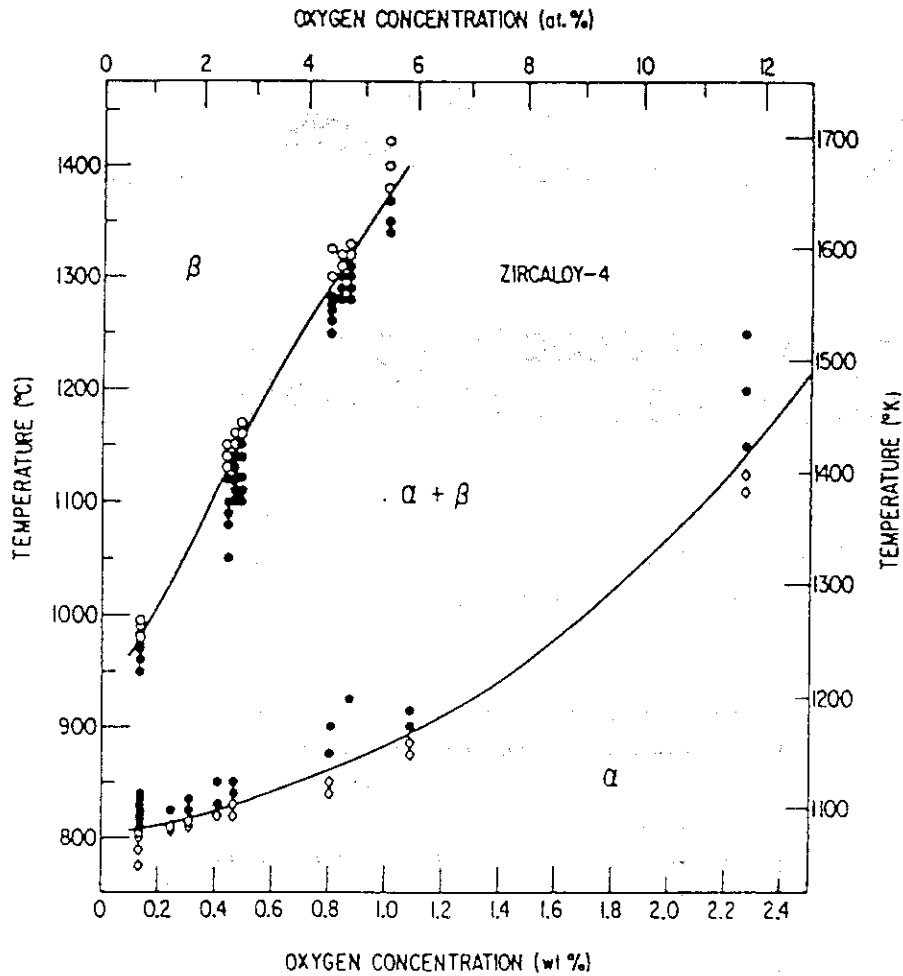


Fig. 15 Pseudobinary Zircaloy-oxygen phase diagram determined from metallographic measurements on oil-quenched specimens. (Chung, H.M. and Kassner, T.F.)

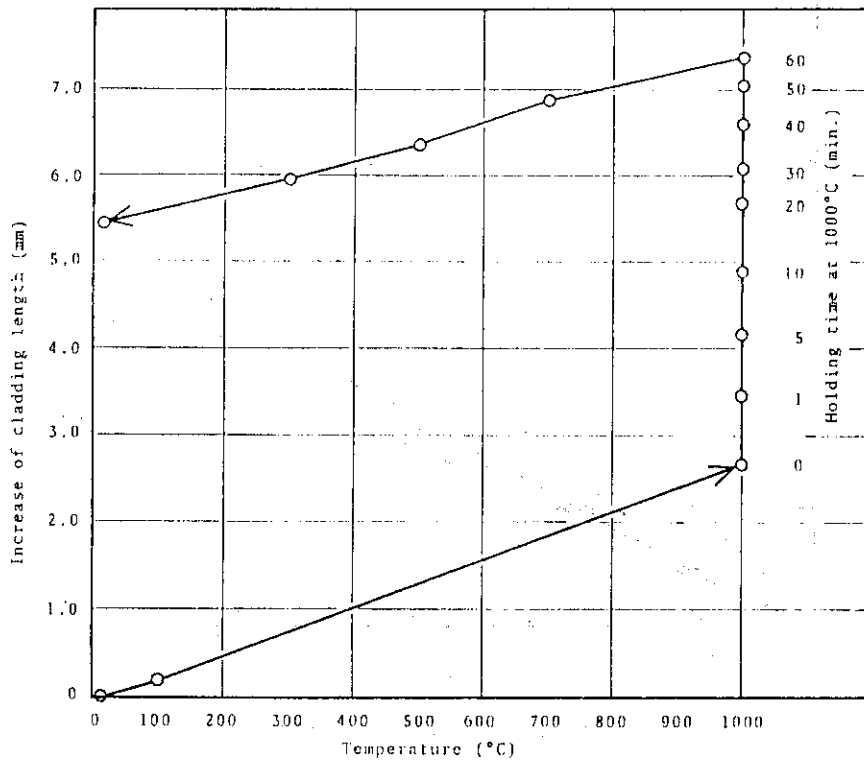


Fig. 16 Variation of the cladding length as functions of temperature and holding time

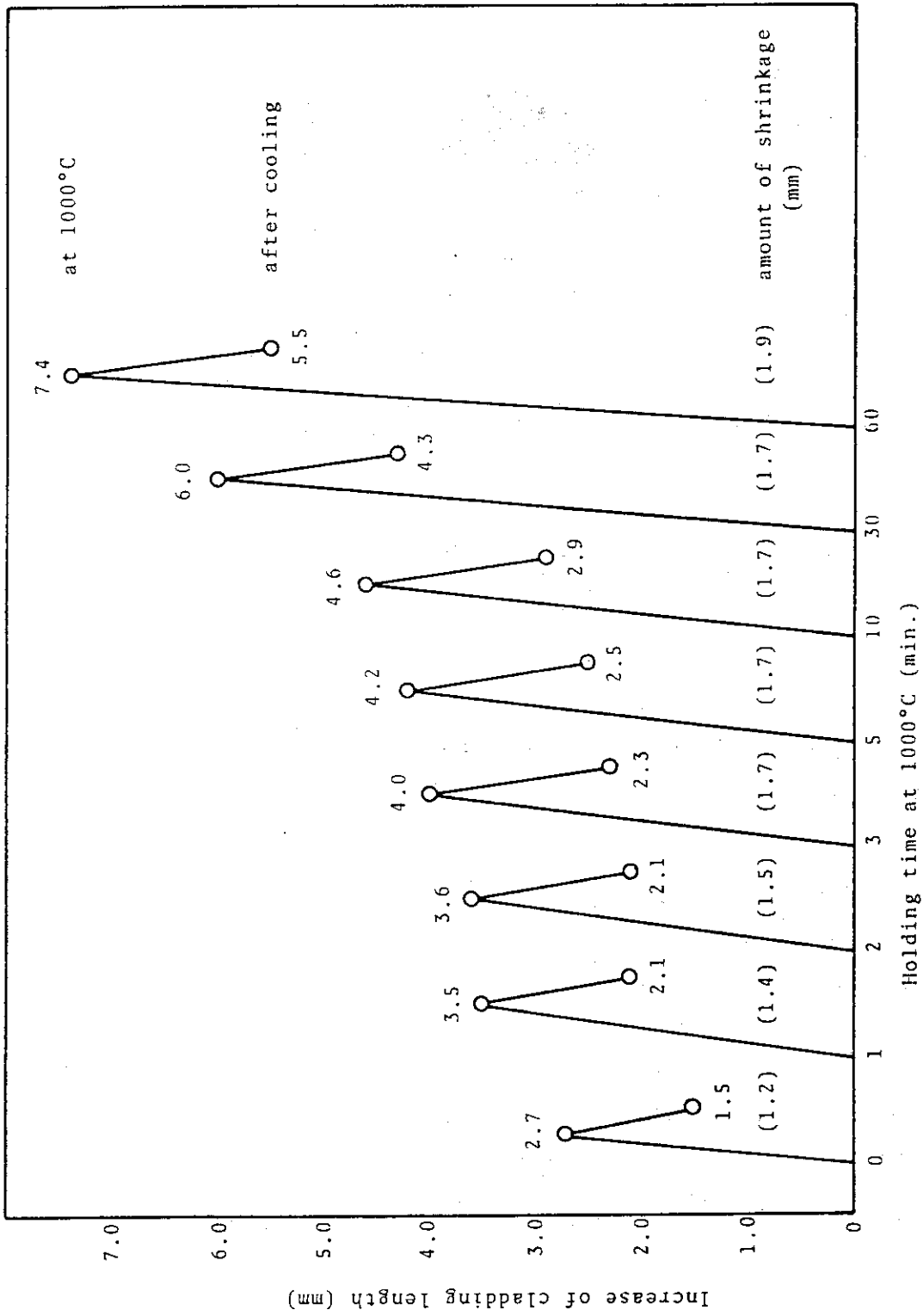


Fig.17 Time dependence of thermal expansion and shrinkage of claddings oxidized at 1000°C

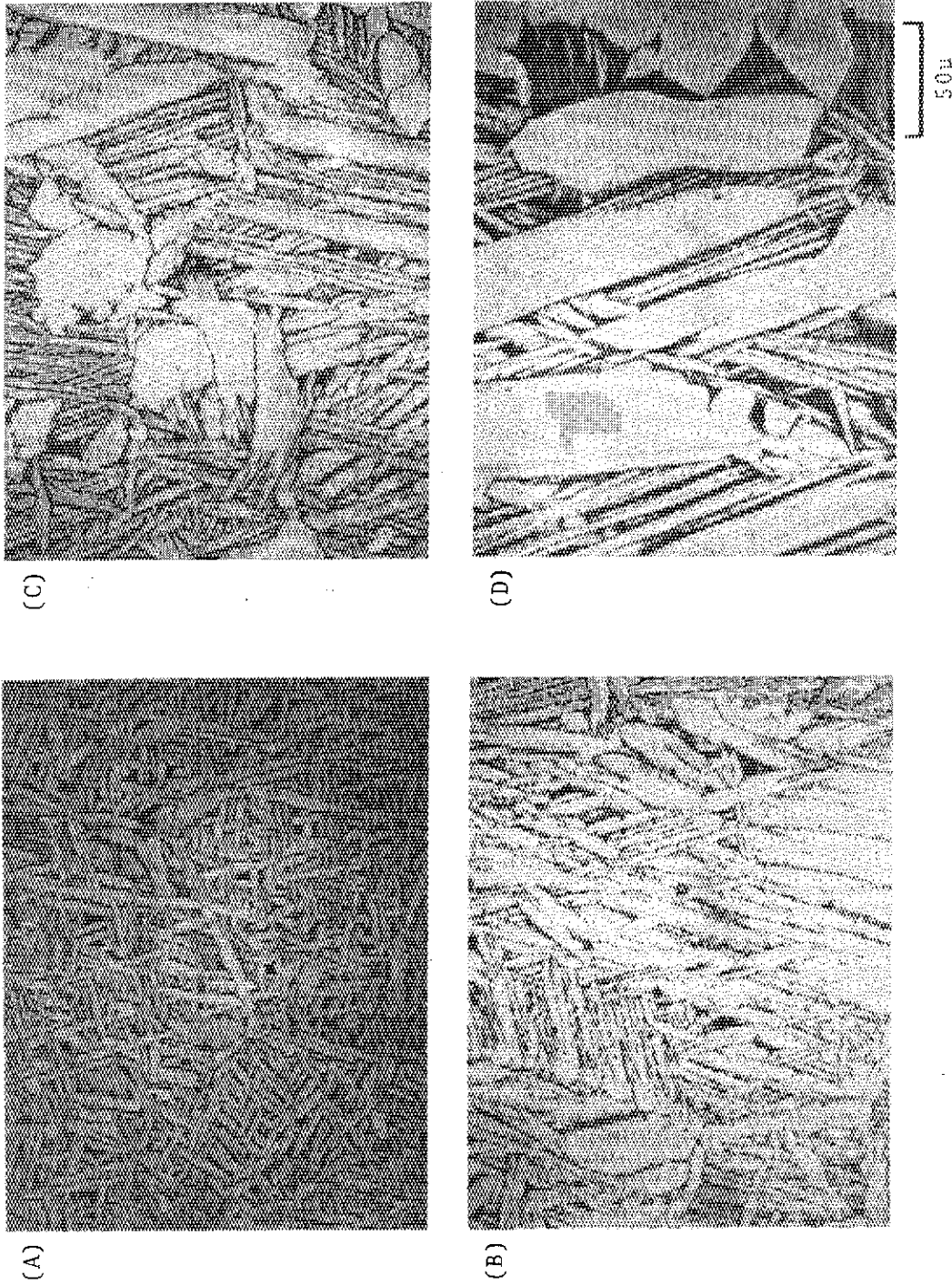


Fig.18 Photomicrographs of Zircaloy-4 claddings heated to 1000°C and oxidized for various time
Holding time at 1000°C : (A) 0min. (B) 5min. (C) 30min. (D) 60min.

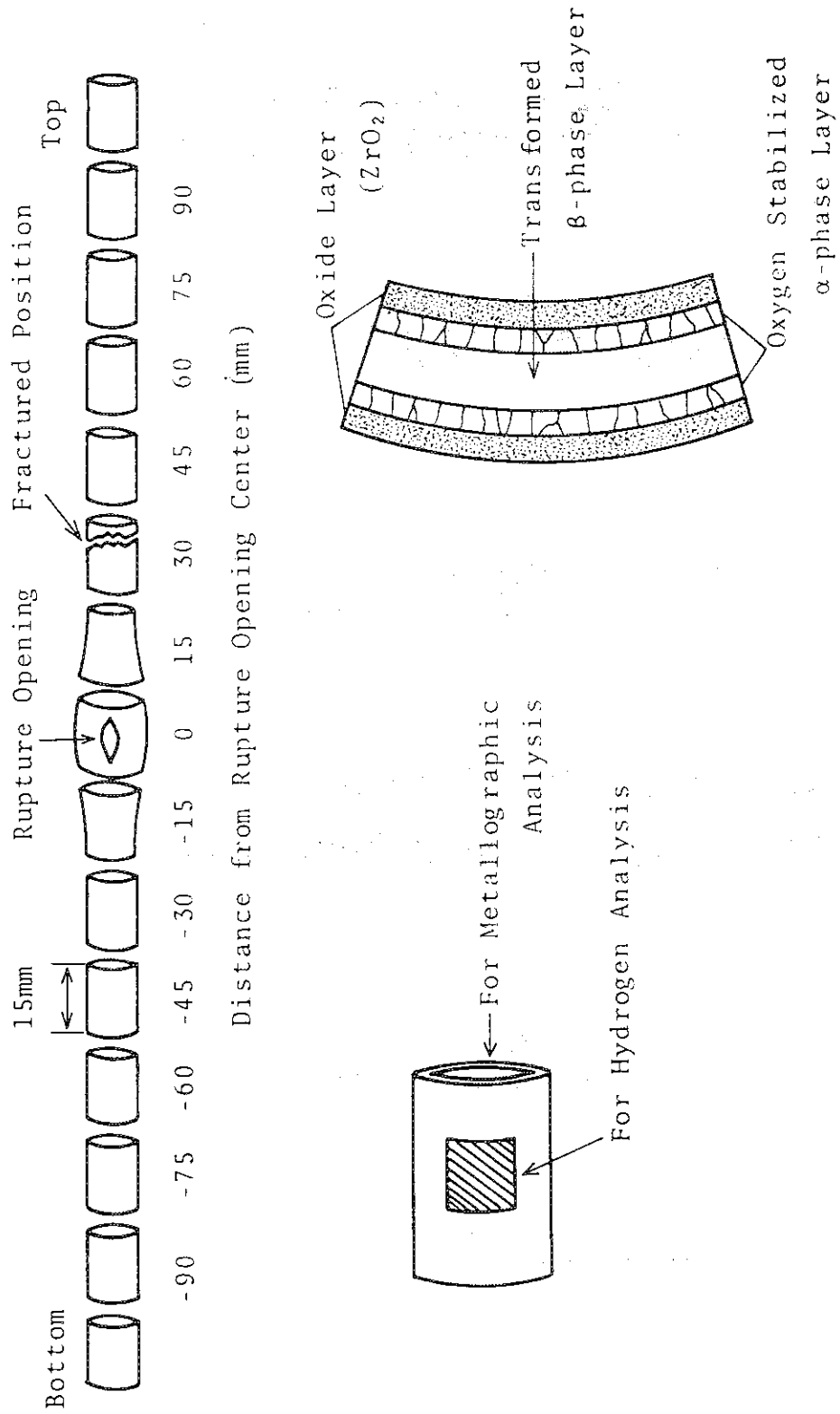


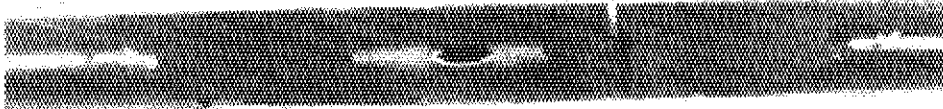
Fig.19 Sectioning of specimens into test pieces for metallographic and hydrogen analysis.

No. 34



1215°C - 10min.
ECR : 31.7%

No. 35



1310°C - 5min.
ECR : 35.6%

No. 36



1050°C - 50min.
ECR : 27.1%

No. 37



990°C - 15min.
ECR : 9.9%

No. 38



925°C - 50min.
ECR : 11.0%

Fig.20 Zircaloy-4 cladding tubes failed on quenching under restrained condition.

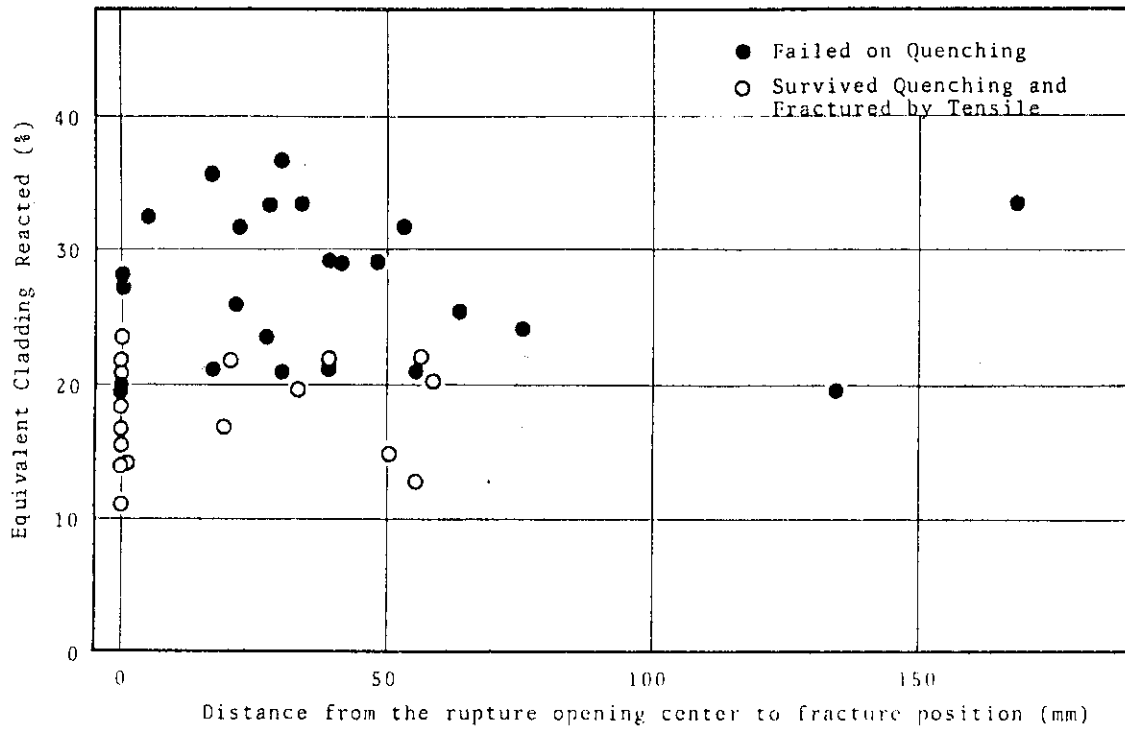


Fig.21 Relation between the oxidation condition and distance from the rupture opening center to fracture position

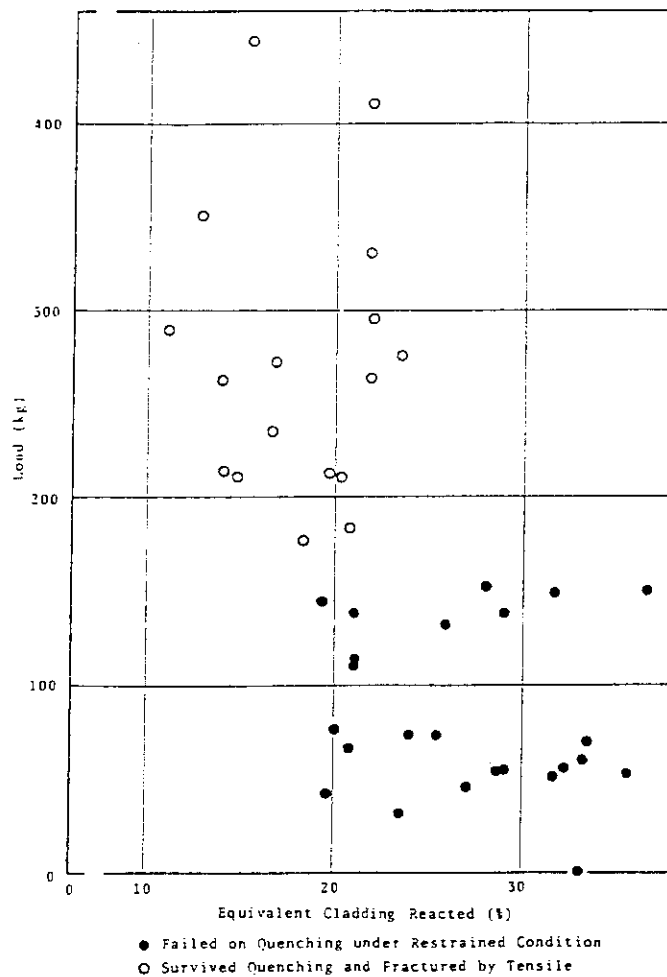


Fig.22 Correlation between oxidation condition(ECR) and fracture load

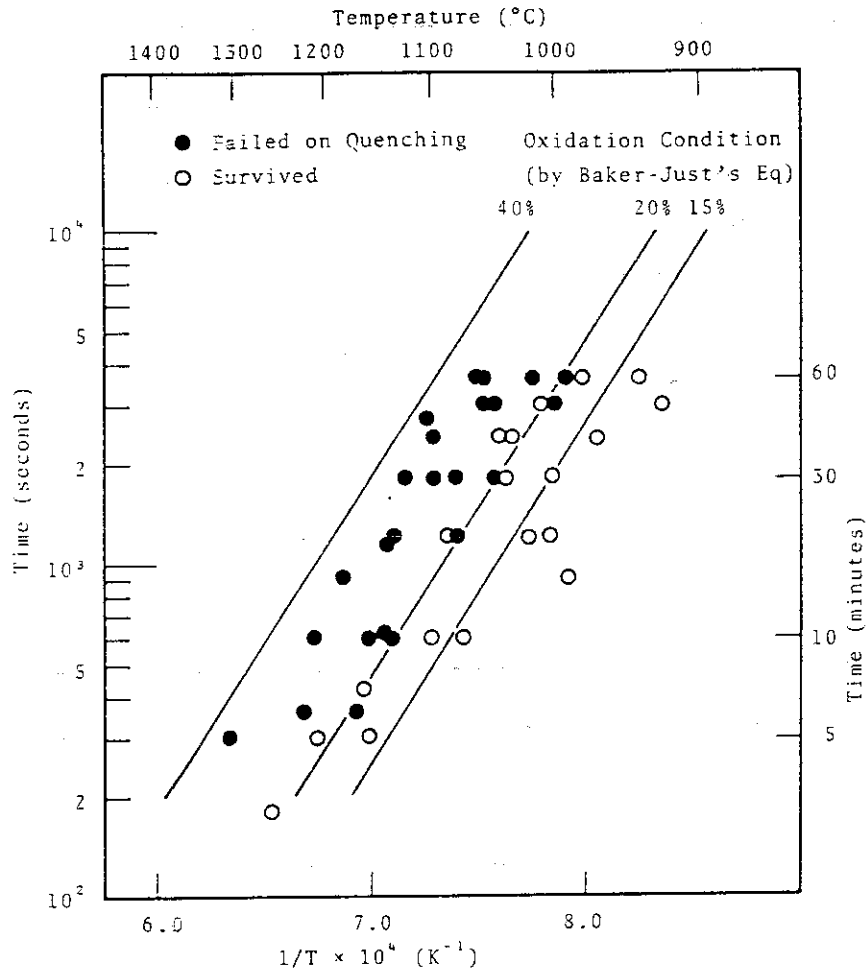


Fig. 23 Failure map for Zircaloy-4 cladding by thermal shock under restrained condition relative to the time and temperature of isothermal oxidation after rupture in steam

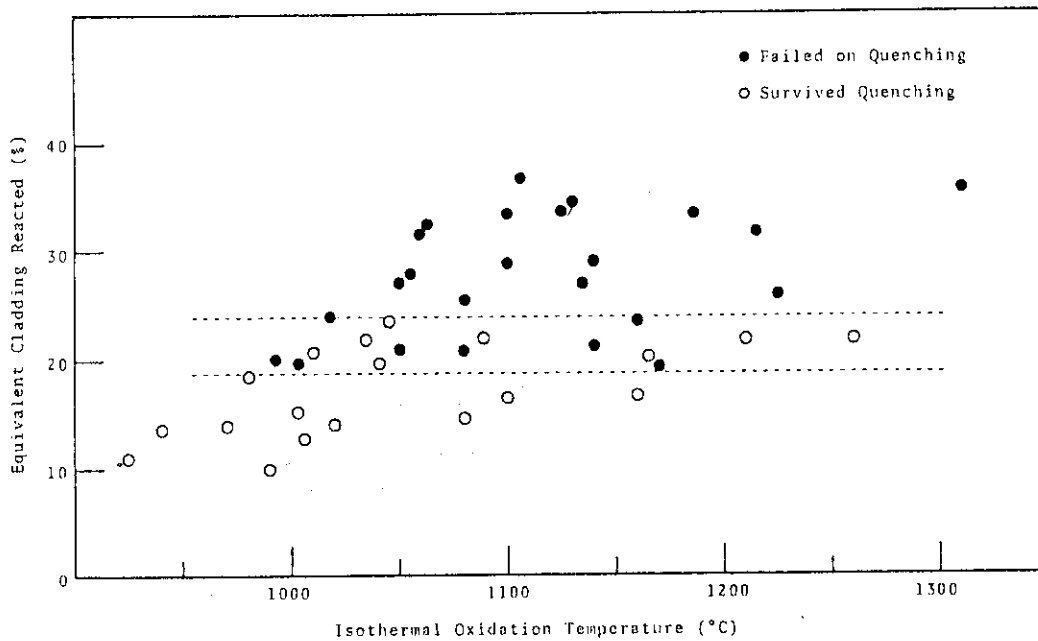


Fig. 24 Failure map for zircaloy-4 cladding by thermal shock under restrained condition relative to the equivalent-cladding-reacted parameter and isothermal oxidation temperature after rupture in steam.

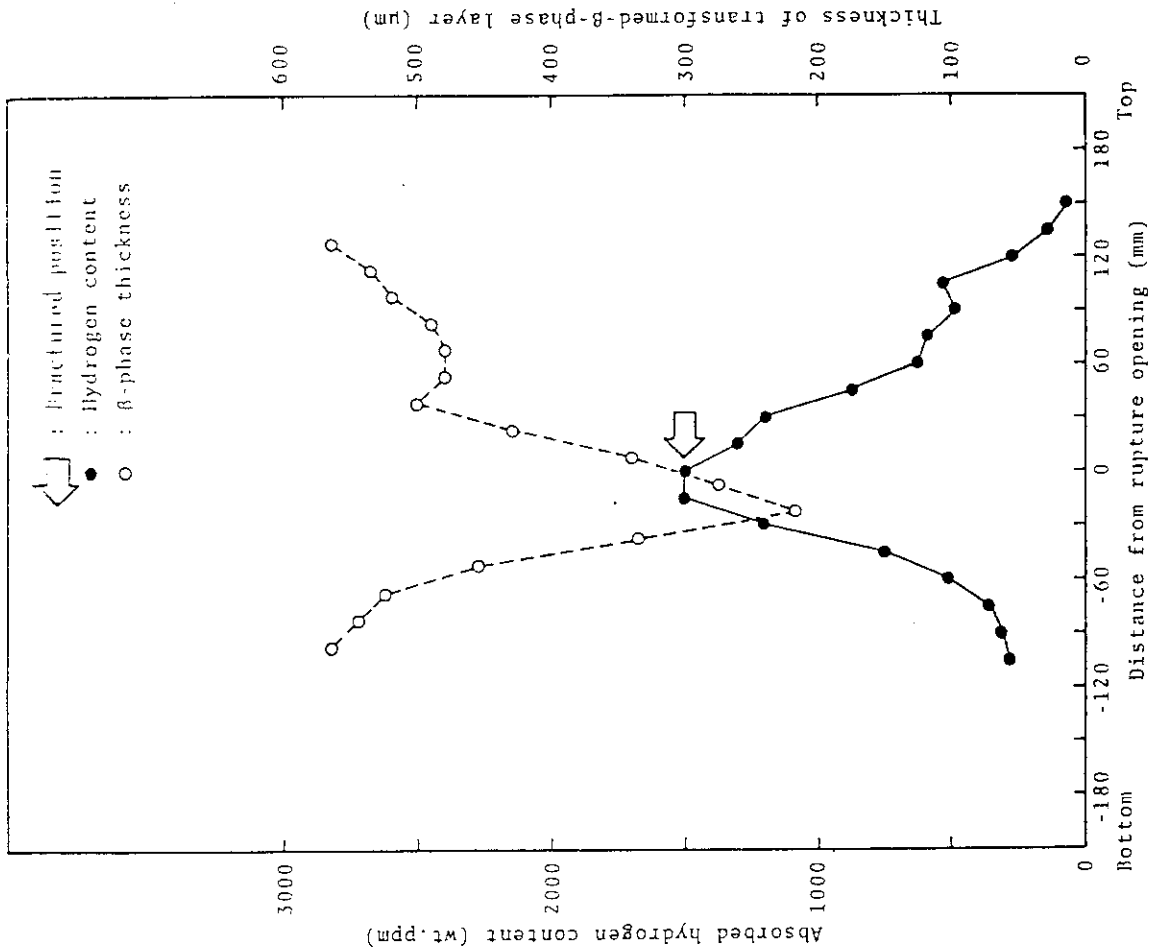


Fig.26 Correlation between distributions of transformed-β-phase layer thickness and absorbed hydrogen content along Zircaloy-4 cladding tube oxidized at 993°C for 60 minutes after rupture

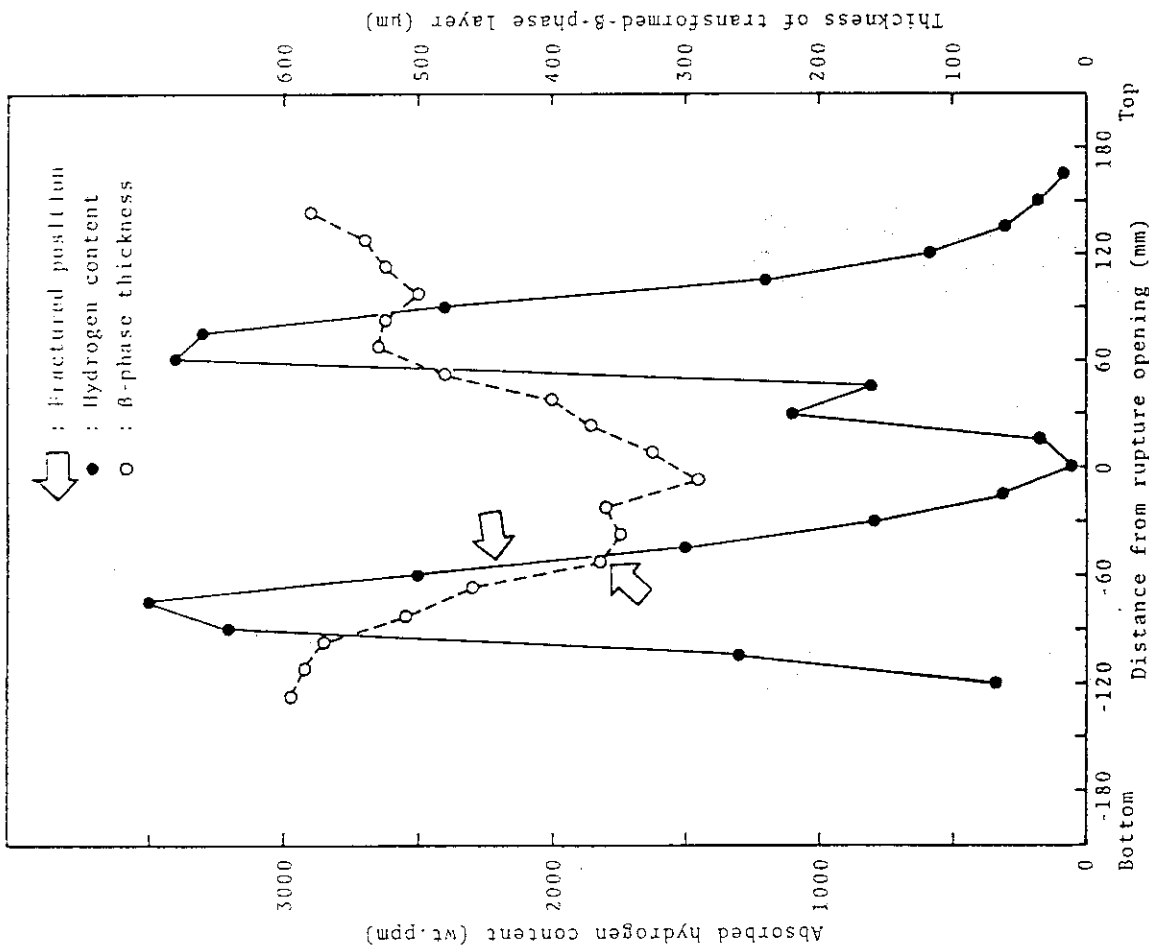


Fig.25 Correlation between distributions of transformed-β-phase layer thickness and absorbed hydrogen content along Zircaloy-4 cladding tube oxidized at 1050°C for 30 minutes after rupture

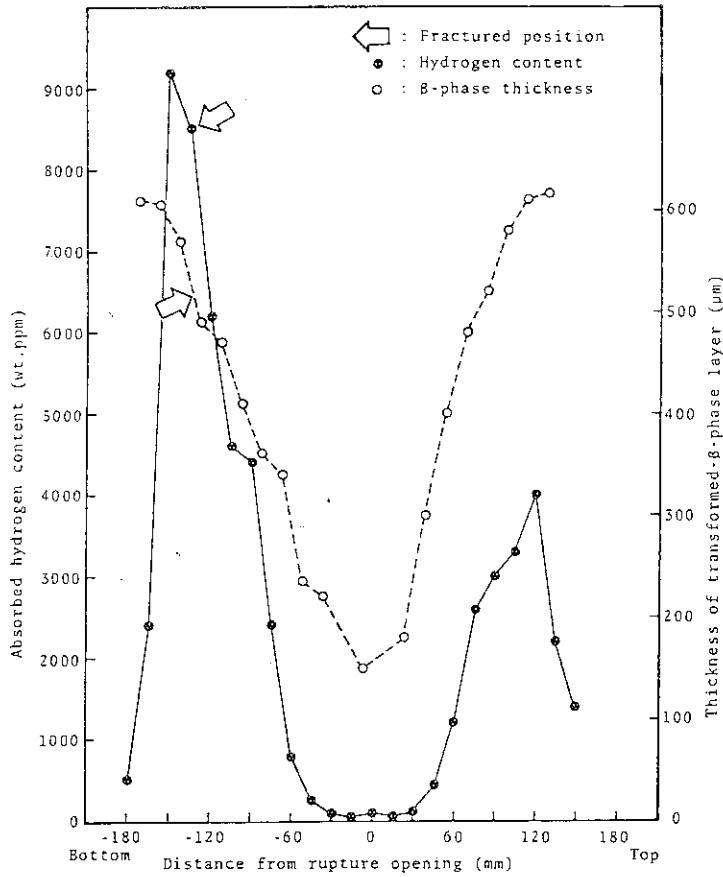


Fig. 27 Correlation between distributions of transformed-β-phase layer thickness and absorbed hydrogen content along Zircaloy-4 cladding tube oxidized at 1003°C for 50 minutes after rupture

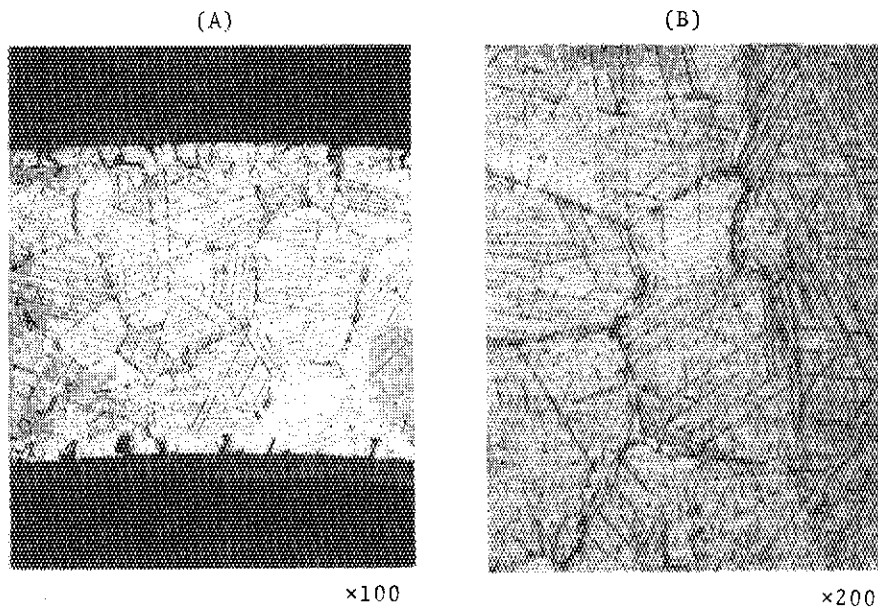


Fig. 28 Optical micrographs of Zircaloy-4 cladding oxidized at ~920°C for 50 minutes after rupture in steam

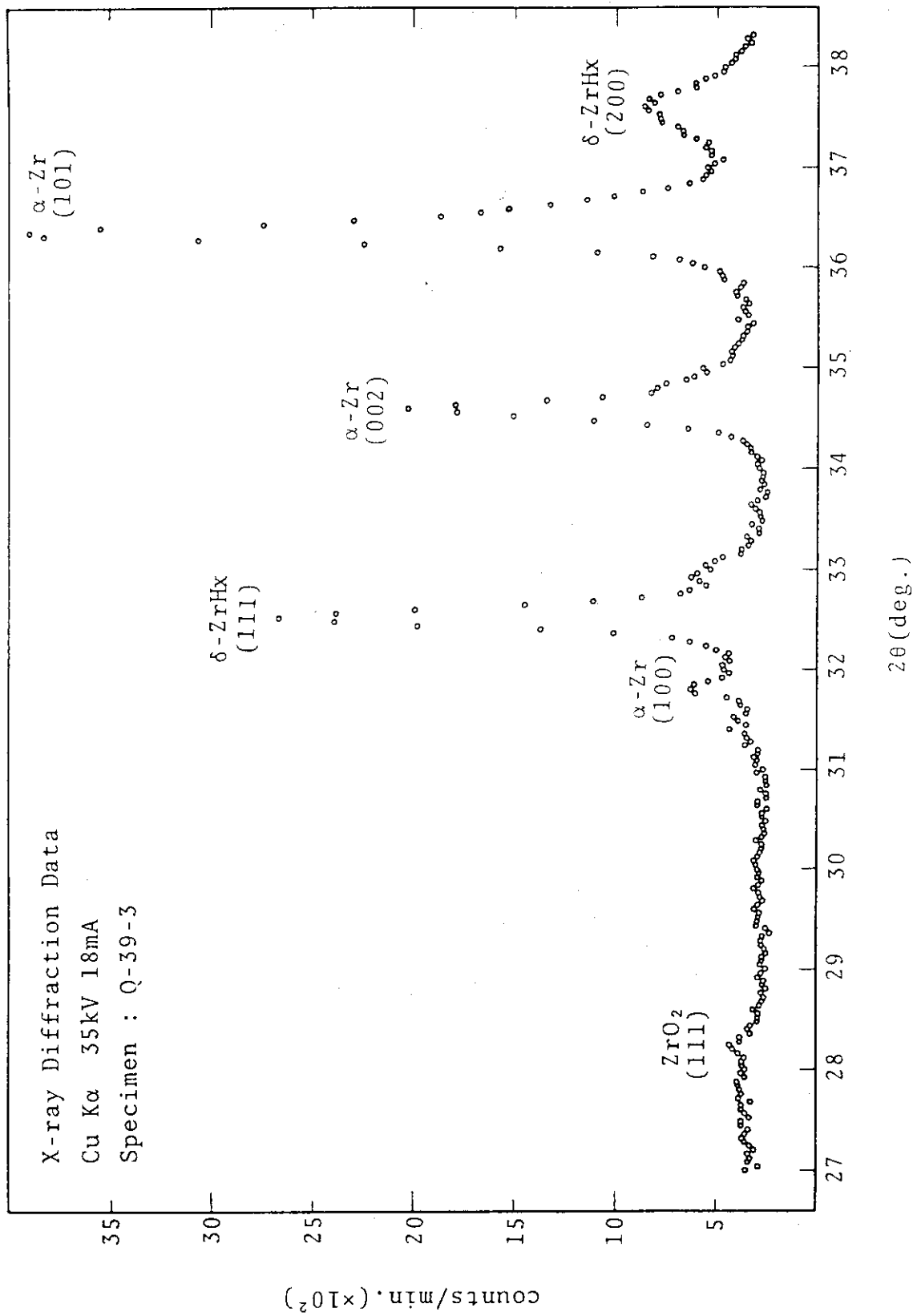


Fig.29 X-ray diffraction pattern of Zircaloy-4 cladding tube ruptured and oxidized in steam

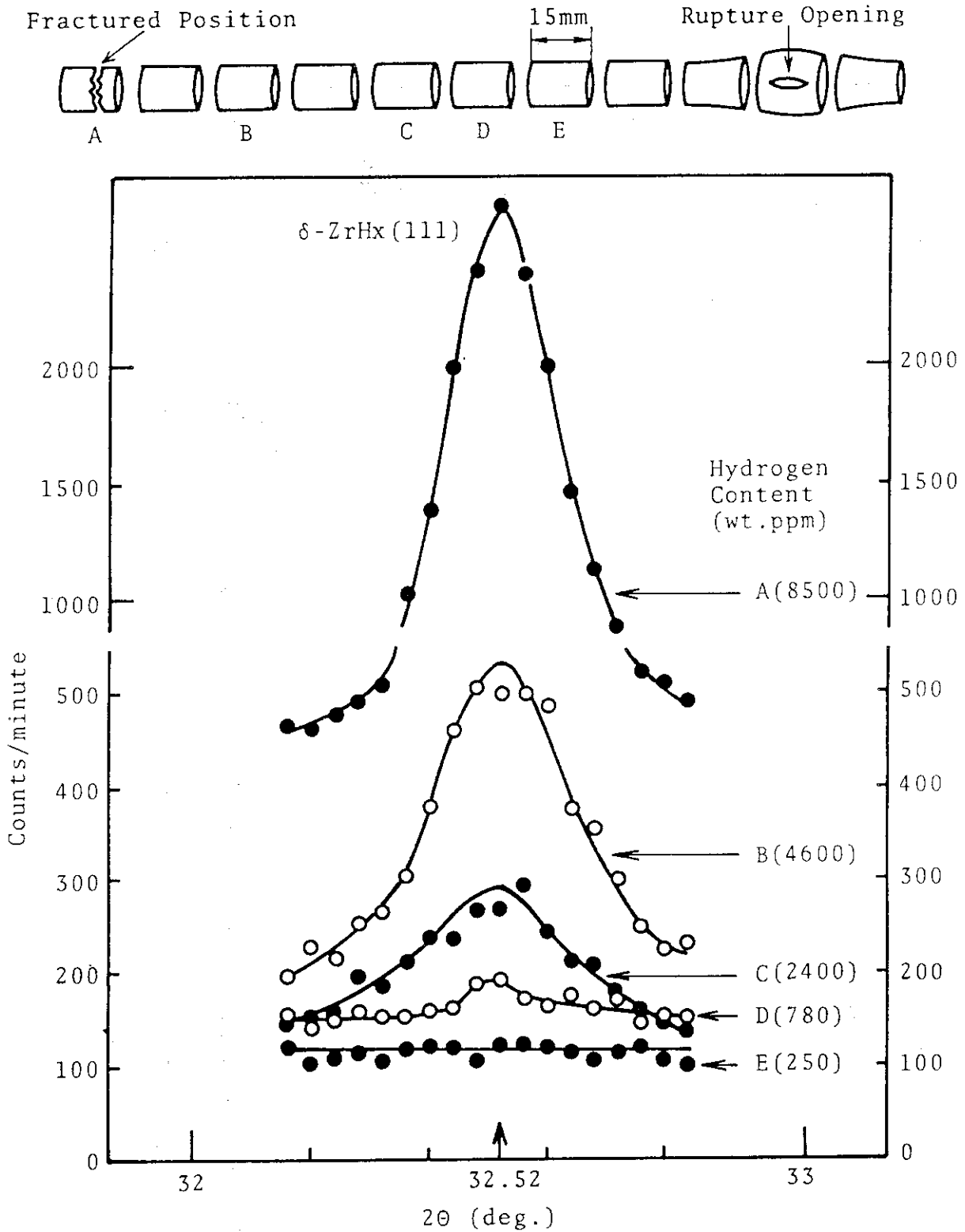


Fig. 30 Change of $\delta\text{-ZrH}_x(111)$ peak in X-ray diffraction pattern, with hydrogen content as parameter.

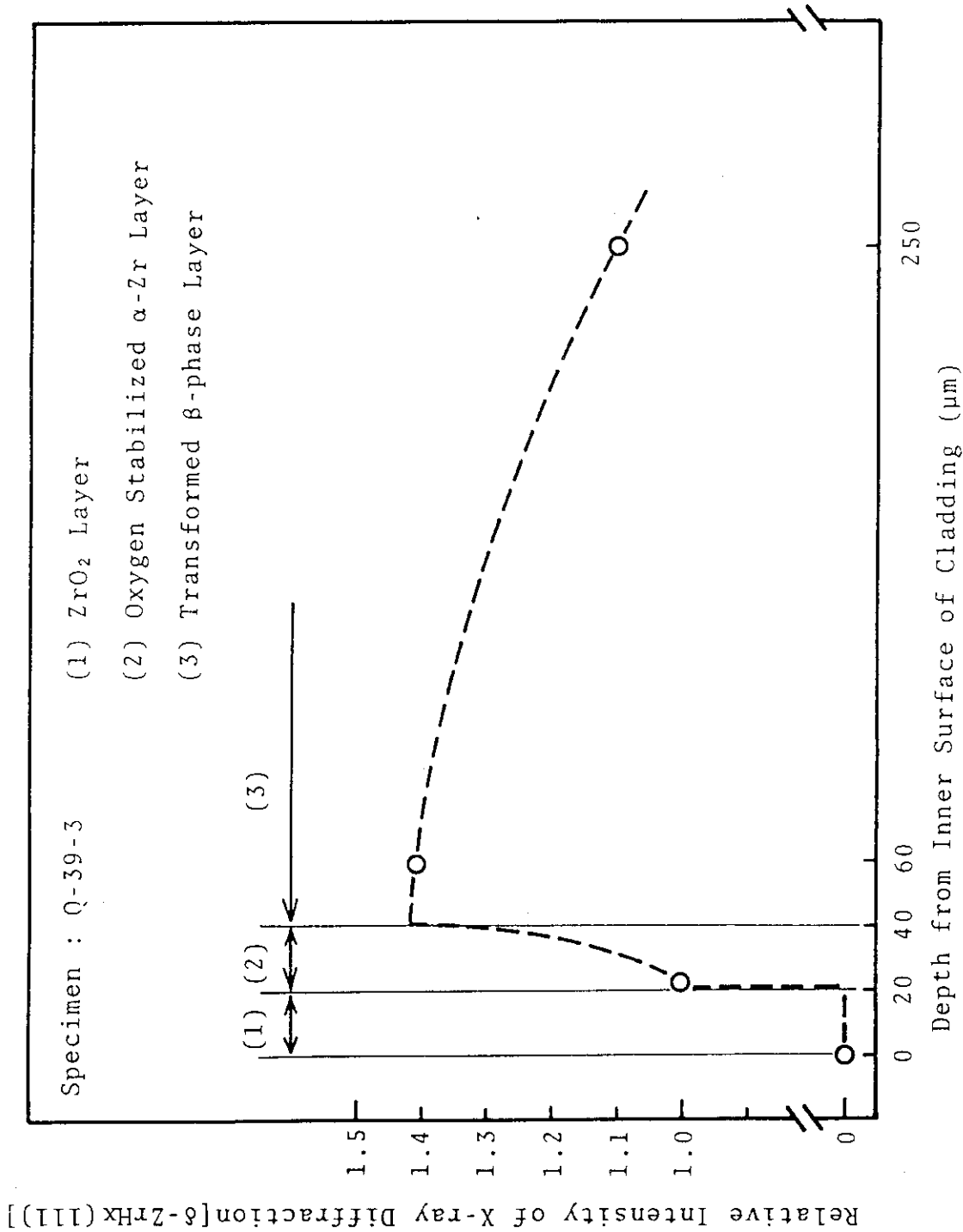


Fig. 31 Correlation between relative intensity of X-ray diffraction by δ -ZrHx(111) and depth from inner surface of cladding tube containing 8500wt.ppm hydrogen.