

JAERI-M

9 4 4 5

LOCA 時内面酸化によるジルカロイ
被覆管の脆化

— 模擬燃料棒による内面酸化実験(1) —

1981年4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.

LOCA時内面酸化によるジルカロイ被覆管の脆化
—模擬燃料棒による内面酸化実験(1)—

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

(1981年3月13日受理)

軽水炉の LOCA時に燃料棒が破裂した場合に生じる内面酸化による被覆管脆化を明らかにするために、水蒸気流中で模擬燃料棒破裂・酸化実験を行った。その結果、内面酸化した燃料被覆管の脆化は被覆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。100°Cにおける圧縮試験の結果、ジルカロイ被覆管は酸化温度が1000°C以上の場合、吸収水素量200~300 wt. ppm以上で脆化することがわかった。酸化温度が932~972°Cの場合には500~750 wt. ppm以上で脆化していた。被覆中に吸収された水素はprior-β結晶粒界近傍に1 μm以下の微細な水素化物として析出していた。破裂開口中心から軸方向に15~45mm離れた位置に水素吸収のピークがあった。水素吸収のピーク位置が酸化条件の違いによって変化することから内面酸化に伴う被覆中への水素吸収は内面の雰囲気、特に水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2}/V_{H_2O}) に影響されると考えられる。

Zircaloy Cladding Embrittlement due to Inner Surface Oxidation
during a LOCA

- Inner Surface Oxidation Experiment using a Simulated Fuel Rod (1) -

Hiroshi UETSUKA, Teruo FURUTA and Satoru KAWASAKI
Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment, JAERI
(Received March 13, 1981)

Simulated fuel rod burst-oxidation experiment in steam was performed in order to make clear the cladding embrittlement behavior due to inner surface oxidation during a LOCA.

It was found that the main factor influencing the cladding embrittlement due to inner surface oxidation is absorbed hydrogen. Ring compression test at 100°C showed that cladding with more than 200~300 wt.ppm of absorbed hydrogen are brittle when the oxidation temperature is above 1000°C. When the oxidation temperature ranges from 932°C to 972°C, claddings with more than 500~750 wt.ppm of absorbed hydrogen are brittle.

Hydrogen absorbed in the cladding precipitated in the vicinity of prior-β grain boundaries as fine hydride. Hydrogen absorption peak located in the range 15 to 45mm from the center of rupture opening.

It was suggested that the hydrogen absorption behavior is strongly influenced by inner surface atmosphere, especially hydrogen-steam volume ratio (V_{H_2}/V_{H_2O}).

Keywords: LOCA, Zircaloy Tube, Zircaloy-4 Cladding, Steam Oxidation,
Inner Surface Oxidation, Hydrogen Absorption, Hydride,
Hydrogen Embrittlement

目 次

1. 諸 言	1
2. 実 験	2
2.1 模擬燃料棒	2
2.2 水蒸気中バースト実験装置および試験法	2
2.3 脆化評価試験	2
3. 結 果	3
4. 考 察	6
4.1 被覆管脆化の評価	6
4.2 内面酸化による被覆管脆化現象	7
4.3 被覆内面における水素吸収	8
4.3.1 水素の発生位置と吸収位置	8
4.3.2 水素吸収のメカニズム	11
4.4 内面酸化による脆化と被覆管の健全性	12
4.5 今後の問題点	13
5. 結 論	14
謝 辞	15
参考文献	15

Contents

1.	Introduction -----	1
2.	Experiments -----	2
2.1	Simulated Fuel Rod -----	2
2.2	Apparatus for Rod Burst Test in Steam and Experimental Method -----	2
2.3	Experiment for Embrittlement Evaluation -----	2
3.	Results -----	3
4.	Discussion	
4.1	Evaluation for Cladding Embrittlement -----	6
4.2	Embrittlement due to Inner Surface Oxidation -----	7
4.3	Hydrogen Absorption during Inner Surface Oxidation	
4.3.1	Position of Hydrogen Generation and Absorption -----	8
4.3.2	Mechanism of Hydrogen Absorption -----	11
4.4	Embrittlement due to Hydrogen Absorption and Cladding Performance -----	12
4.5	Future Subjects -----	13
5.	Conclusions -----	14
	Acknowledgement -----	15
	References -----	15

1. 緒 言

冷却材喪失事故（LOCA）は原子炉立地審査及び非常用炉心冷却系（ECCS）性能評価のために考えられた想定事故であり、技術的な見地からは発生するとは考えられない事故であると言われている。万一発生した場合にでも放射性核分裂生成物が原子炉施設周辺に放出されることを抑制するために ECCS の設置が義務づけられている。わが国では ECCS 等の設計上の機能及び性能を評価するために「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針」が定められている。

軽水炉の LOCA 時には、燃料被覆管は高温水蒸気雰囲気のもとで酸化し、酸化が著しい場合には脆化する。燃料棒の大破損を防止するための必要な条件の一つとして燃料被覆管が十分な延性を保持していることが挙げられるが、安全評価指針ではそのために、

- (1) 燃料被覆管温度の計算値の最高値は、1200℃以下でなければならない。
- (2) 燃料被覆管の全酸化量の計算値は、酸化前の燃料被覆管厚さの15%以下でなければならない。

という二つの基準を設定している。これらの基準値は高温水蒸気流中で行われた数多くのジルカロイ酸化実験データ⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁵⁾に基づいて、ジルカロイが脆化するに至らないと判断される上限の酸化条件（酸化温度と酸化量）にある程度の余裕を見込んで設定されたものである。又、これらの基準値はジルカロイ被覆管が高温水蒸気中に曝された場合に生じる酸化と酸素吸収及び金属組織変化による脆化を考慮したものであり、従来十分な安全余裕を含むものであると考えられていた。しかし、LOCA 時に燃料被覆管が破裂した場合に起こる内面酸化は被覆管外面の酸化とは異なる場合⁽⁶⁾のあることが指摘され、内面酸化による被覆管脆化挙動も検討する必要性が生じた。

これまでに著者らが行ってきた軽水炉 LOCA 時内面酸化を模擬した一連の実験⁽⁶⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾、即ち滞留水蒸気中及び水素・水蒸気混合雰囲気中でのジルカロイ酸化実験から以下のことが明らかになった。

- (1) 滞留水蒸気中酸化では水蒸気流中酸化に比べて大幅に少い酸化量でジルカロイは脆化する。
- (2) 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による水素脆化である。
- (3) 水素／水蒸気体積比が一定の値以上になるとジルカロイ中への水素吸収が急増する。この値は酸化温度によって異なる。

以上の結果から、LOCA 時に内面酸化が生じた場合のジルカロイ被覆管脆化挙動は従来考えられていた脆化挙動とは性質が異なるものであり、脆化の程度も著しく大きいことが予想されるため更に LOCA 条件に近い実験を行う必要性が高まった。本研究では UO₂ ペレットの代わりに Al₂O₃ ペレットを充填した模擬燃料棒を用いて被覆管内面酸化模擬実験を行い、酸化後のジルカロイ被覆管脆化挙動を検討した。

2. 実 験

2.1 模擬燃料棒

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。その組成を表1に示す。このジルカロイ-4管から図1に模式的に示す模擬燃料棒を製作し実験に供した。模擬燃料棒の被覆管長さは200mm, 被覆管内部にはアルミナペレット(外径9.00mm, 長さ10.00mm, 純度99.5%以上, 比重3.9以上)及びアルゴンガス(純度99.99%)を充填した。模擬燃料棒を昇温中に破裂させるためにアルゴンガス充填圧力は $10\sim 50\text{kg/cm}^2$ とした。又, 模擬燃料棒内空隙容積は約1.4ccである。

2.2 水蒸気中バースト実験装置および試験法

水蒸気流中バースト実験装置の模式図を図2に示す。

本装置は赤外線瞬間加熱装置(赤外線ゴールドイメージ炉本体, 電源, 温度制御器, プログラムユニット)及び水蒸気発生装置から構成される。本実験では, 模擬燃料棒を赤外線炉中心にセットし, 水蒸気流中で急速加熱し破裂させ等温酸化を行ったが, 燃料棒表面温度測定及び赤外線炉温度制御のため模擬燃料棒中心位置に二組の熱電対(Pt-Pt/Rh13%, $0.3\text{mm}\phi$)をスポット溶接している。又, 燃料棒の昇温及び等温保持は予めプログラム設定して行った。本実験における模擬燃料棒温度履歴を表わす模式図を図3に示す。模擬燃料棒は約1分間で所定温度まで昇温させた。昇温速度は約 $15\sim 20^\circ\text{C}/\text{秒}$ である。 $880\sim 1167^\circ\text{C}$ の所定温度に到達後 $35\sim 480$ 秒間の等温保持を行い, 酸化後は模擬燃料棒を速やかに炉外に取り出し空冷した。所定の保持温度から 700°C までの間の冷却速度は $15^\circ\text{C}/\text{秒}$ 以上であったが, 保持温度から 500°C までの間の平均冷却速度は $5\sim 7^\circ\text{C}/\text{秒}$ であった。又, 本実験では水蒸気流量^{*}(steam flow rate)を $0.13\text{g/cm}^2\cdot\text{min}$, $0.66\text{g/cm}^2\cdot\text{min}$ 及び $1.60\text{g/cm}^2\cdot\text{min}$ の3通りとしたが, 大部分の実験は $1.60\text{g/cm}^2\cdot\text{min}$ という条件で行った。

2.3 脆化評価試験

水蒸気流中で破裂後内面酸化した模擬燃料棒を精密切断機によって図4に模式的に示すように長さ15mmのリング状に切断した。模擬燃料棒切断に際しては, 被覆管に無理な力が加わらないように注意した。又, リング状試片は一本の模擬燃料棒あたり7個~9個切り出した。内面酸化後の模擬燃料棒の延性は切り出したリング状試片を 100°C で圧縮試験し, その際の変位量によ

* 水蒸気流速で表現するのが一般的であるが, 平均的な流速の測定が困難であるので便宜上単位面積・単位時間あたりの流量($\text{g/cm}^2\cdot\text{min}$)で表わす。

て評価した。具体的には図5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その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万能試験機で、圧縮速度は20mm/minとした。又、破裂開口を含むリング状試片(図4の4に相当)は圧縮試験の際に、破裂開口面が圧縮軸と平行になるようにセットした。一部の試料については、被覆管内面に形成された酸化膜の厚さ測定及びガス分析法による吸収水素量測定も合わせて行った。

3. 結 果

今回の実験で得られた結果の一部を表2と表3にまとめて示す。表2には実験した28本の模擬燃料棒について実験条件(酸化温度、保持時間、水蒸気流量)及び実験結果のうち破裂開口部面積、更に各模擬燃料棒から切り出したリング状試片を100°Cで圧縮試験した場合の変位量($d_{0.8}$)を示してある。この中で圧縮試験における変位量は破裂開口部からの距離(破裂開口部中心と切り出したリング状試片の中心位置との距離)で整理して示している。即ち、破裂開口部からの距離が「0」であれば、それは破裂開口を含むリング状試片であり、「-30」であればリング状試片の中心が破裂開口部中心から下方へ30mm離れていることを意味する。又、100°Cでの圧縮試験における変位量($d_{0.8}$)が5.0mm以上であったものはすべて5.0と表示している。

今回の実験では模擬燃料棒中の充填ガス圧力の違いによる破裂開口部面積の変化を調べるために、充填ガス圧力を10kg/cm²、20kg/cm²、30kg/cm²、40kg/cm²、50kg/cm²の5通りとした。しかし、図6に示すように、破裂開口部面積は20kg/mm²及び30kg/mm²の場合にいくぶん大きくなる傾向があるものの、いずれの場合にも1~5mm²程度と小さく、大部分は1.5~3.5mm²の範囲内であった。

図7に水蒸気流量1.60g/cm²・min.で240秒間等温酸化させた5本の模擬燃料棒について、100°Cのリング圧縮試験における変位量を破裂開口部からの距離との関係で示す。酸化温度は964°C、1008°C、1059°C、1111°C、1167°Cである。酸化温度が964°Cの場合、明らかな脆化が認められるのは破裂開口から45mm離れた位置のみであるが、酸化温度が更に高くなると脆化の程度が大きくなると共に脆化する範囲が広がる。特に、酸化温度が1008°C以上の模擬燃料棒は破裂開口から15mm及び30mm離れた位置で著しく脆化している。又、破裂開口部では酸化温度が高くなるほど脆化する傾向が見られる。更に、脆化の程度及び広がり、酸化温度の違いにかかわらず破裂開口を中心としてその上下ではほぼ対称である。この結果から一定の酸化時間に対して、被覆管が脆化する下限の温度を実験的に求めることができると考えられる。

酸化温度が1040°C~1059°Cとほぼ同じで酸化時間が異なる4本の模擬燃料棒について、リング圧縮試験における変位量と破裂開口からの距離の関係を図8に示す。酸化時間は35秒、90秒、150秒、240秒である。この図から酸化時間が長くなるほど脆化の程度が大きくなり、脆化する範囲も広がることがわかる。例えば、酸化時間が35秒、90秒と比較的短い場合にはリング圧縮試験で変位量が1.0mm以下の位置は一箇所もないが、150秒、240秒と長くなった場合には切り出したリング状試片のうち各々4個、6個の変位量が1.0mm以下である。この結果から被覆管を

て評価した。具体的には図5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その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万能試験機で、圧縮速度は20mm/minとした。又、破裂開口を含むリング状試片(図4の4に相当)は圧縮試験の際に、破裂開口面が圧縮軸と平行になるようにセットした。一部の試料については、被覆管内面に形成された酸化膜の厚さ測定及びガス分析法による吸収水素量測定も合わせて行った。

3. 結 果

今回の実験で得られた結果の一部を表2と表3にまとめて示す。表2には実験した28本の模擬燃料棒について実験条件(酸化温度、保持時間、水蒸気流量)及び実験結果のうち破裂開口部面積、更に各模擬燃料棒から切り出したリング状試片を100°Cで圧縮試験した場合の変位量($d_{0.8}$)を示してある。この中で圧縮試験における変位量は破裂開口部からの距離(破裂開口部中心と切り出したリング状試片の中心位置との距離)で整理して示している。即ち、破裂開口部からの距離が「0」であれば、それは破裂開口を含むリング状試片であり、「-30」であればリング状試片の中心が破裂開口部中心から下方へ30mm離れていることを意味する。又、100°Cでの圧縮試験における変位量($d_{0.8}$)が5.0mm以上であったものはすべて5.0と表示している。

今回の実験では模擬燃料棒中の充填ガス圧力の違いによる破裂開口部面積の変化を調べるために、充填ガス圧力を10kg/cm²、20kg/cm²、30kg/cm²、40kg/cm²、50kg/cm²の5通りとした。しかし、図6に示すように、破裂開口部面積は20kg/mm²及び30kg/mm²の場合にいくぶん大きくなる傾向があるものの、いずれの場合にも1~5mm²程度と小さく、大部分は1.5~3.5mm²の範囲内であった。

図7に水蒸気流量1.60g/cm²・min.で240秒間等温酸化させた5本の模擬燃料棒について、100°Cのリング圧縮試験における変位量を破裂開口部からの距離との関係で示す。酸化温度は964°C、1008°C、1059°C、1111°C、1167°Cである。酸化温度が964°Cの場合、明らかな脆化が認められるのは破裂開口部から45mm離れた位置のみであるが、酸化温度が更に高くなると脆化の程度が大きくなると共に脆化する範囲が広がる。特に、酸化温度が1008°C以上の模擬燃料棒は破裂開口部から15mm及び30mm離れた位置で著しく脆化している。又、破裂開口部では酸化温度が高くなるほど脆化する傾向が見られる。更に、脆化の程度及び広がり、酸化温度の違いにかかわらず破裂開口部を中心としてその上下ではほぼ対称である。この結果から一定の酸化時間に対して、被覆管が脆化する下限の温度を実験的に求めることができると考えられる。

酸化温度が1040°C~1059°Cとほぼ同じで酸化時間が異なる4本の模擬燃料棒について、リング圧縮試験における変位量と破裂開口部からの距離の関係を図8に示す。酸化時間は35秒、90秒、150秒、240秒である。この図から酸化時間が長くなるほど脆化の程度が大きくなり、脆化する範囲も広がることがわかる。例えば、酸化時間が35秒、90秒と比較的短い場合にはリング圧縮試験で変位量が1.0mm以下の位置は一箇所もないが、150秒、240秒と長くなった場合には切り出したリング状試片のうち各々4個、6個の変位量が1.0mm以下である。この結果から被覆管を

脆化させる一定の酸化温度に対して、被覆管が脆化するための最小時間を実験で決定できると考えられる。

これまでに行われてきた多くの研究で、ジルカロイ被覆管は1050°C、240秒程度の水蒸気流中酸化（本実験では模擬燃料棒被覆管外面の酸化に相当）では脆化しないことが知られている。従って本試験における模擬燃料棒脆化は被覆管内面で生じた酸化挙動に起因すると考えられる。

図9に酸化温度が1050°C程度で酸化時間が異なる4本の模擬燃料棒の内面に形成された酸化膜を光学顕微鏡観察した結果を写真で示す。撮影倍率は400倍である。又、これらの写真は酸化時間が35秒～240秒の4本の模擬燃料棒について、破裂開口部中心位置及び破裂開口中心から上方へ各々15mm、30mm、45mm、60mm離れた位置での被覆管切断面を示すものである。この結果から被覆管内面の酸化は時間の経過と共に破裂開口部から奥へ進行し、酸化膜も厚くなることがわかる。

図9で示した光学顕微鏡写真から測定した内面酸化膜の厚さを破裂開口部中心からの距離との関係で図10に示す。内面酸化膜には多少の凹凸があるが、データは膜厚測定値の最大値と最小値を各々上限、下限とする範囲で示してある。この図から、被覆管内面に形成される酸化膜の厚さは破裂開口を中心として上下ともほぼ対称であること、更に酸化膜の形成される範囲も酸化時間が長くなるほど広がることがわかる。例えば、酸化時間35秒では破裂開口中心から約20～30mmまでしか酸化が及んでいないのに対して、240秒では約60mm離れた位置まで酸化が及んでいる。図の右側に与えてある各酸化時間に対する酸化膜の厚さ（35秒-9.4 μm 、90秒-15 μm 、150秒-19.4 μm 、240秒-24.5 μm ）は水蒸気流量0.2～1.6g/cm²・min.の水蒸気流中でのジルカロイ-水蒸気酸化実験の結果から得られた酸化膜の厚さを求める実験式(1)に本実験における酸化条件（時間、温度）を代入して求めた計算値である。

$$\delta^2/t = 2.15 \times 10^6 \exp\left(-\frac{35860}{RT}\right) \quad (1)$$

δ : 酸化膜厚さ (μm)

R : 一般ガス定数 (cal/mol \cdot °K)

T : 温度 (°K), t: 時間 (秒)

これらの計算値と測定した内面酸化膜の厚さを比較すると、内面酸化膜の厚さは破裂開口部のごく近傍、即ち破裂開口中心から5～20mm程度離れた位置までは水蒸気流中酸化で形成される酸化膜の厚さと同程度かいくぶん厚い程度であるが、それ以上離れた位置では極端に薄くなっていることがわかる。破裂開口部中心位置での内面酸化膜の厚さが水蒸気流中酸化による酸化膜厚さ（計算値）より厚いのは、破裂時の被覆管変形による酸化促進⁽¹⁾⁽²⁾があったためであろう。

表3に内面酸化実験後、水素分析を行った15本の模擬燃料棒について、100°Cでのリング圧縮試験における変位量と水素分析値を対比させて示す。吸収水素量の分析値は同一の模擬燃料棒でも分析したリング状試片の位置の違いによって大幅に異っている。又、圧縮試験における変位量と吸収水素量とは極めて良く対応している。

実験した3本の模擬燃料棒（No. 87, 89, 91）について内面酸化膜の厚さ、圧縮試験における変位量及び吸収水素量を破裂開口部からの距離との関係で図11、図12、図13に示す。図11は1050°Cで90秒間酸化させた場合である。内面酸化膜の厚さは破裂開口部で約18 μm 、破裂開口部か

ら離れるほど薄くなり、破裂開口中心から下方へ 30mm 離れた位置では 1 μ m 程度の酸化膜が形成されていたが上方へ 30mm 離れた位置では酸化膜は観察されなかった。酸化膜が及んでいるのは破裂開口中心から約 30mm の範囲までであると考えられる。破裂開口中心から 45mm 離れた位置を中心として切り出したリング状試片の圧縮試験における変位量は上下とも 5.0mm 以上であり延性の低下は見られない。一方、破裂開口部及び破裂開口中心から 15mm, 30mm 離れた位置では延性の低下が見られる。

従って、延性の低下が見られる範囲は酸化の及んでいる範囲とほぼ一致していると言える。しかし、酸化膜が最も厚い破裂開口部の延性低下の程度は小さいが、酸化膜が比較的薄い位置の延性低下はより著しい。従って、内面に形成された酸化膜の厚さの程度、つまり酸化の進行度と延性低下の程度が対応しているとは言えない。一方、吸収水素量については、破裂開口中心から 30mm 離れた位置に吸収のピークがあり、他の位置では少くなっている。圧縮試験における変位量と吸収水素量は各位置で良く対応している。

図 12 は 1050°C で 150 秒間酸化させた場合について同様のまとめ方をしたものである。内面酸化膜の厚さは破裂開口部で約 26 μ m、破裂開口部から離れるほど薄くなり、酸化が及んでいるのは破裂開口中心から約 45mm 離れた位置までである。圧縮試験で延性の低下あるいは明らかな脆化が見られるのは破裂開口中心から約 45mm 離れたところまでであり、この場合にも延性低下の範囲と酸化が及んでいる範囲は一致している。しかし、内面酸化膜の厚さ、即ち酸化の進行度と脆化の程度が対応しているとは言えない。脆化の著しい位置（- 30mm, 15mm, 30mm）では吸収水素量の分析値はいずれも 500wt. ppm 以上であった。一方、破裂開口部は酸化量が多いものの吸収水素量は 100wt. ppm と少なく延性低下の程度も小さい。

1059°C で 240 秒間酸化させた場合について図 13 に示す。内面酸化膜の厚さは破裂開口部で約 29 μ m、破裂開口中心から 20mm 程度まで離れた範囲では約 25 μ m 以上でかなり厚いが、それ以上離れると大幅に薄くなっている。酸化の及んでいる範囲は破裂開口中心から約 60mm 離れた位置までである。圧縮試験における変位量は、破裂開口部では 1mm 程度であるが、破裂開口中心から上下へ各々 15mm, 30mm, 45mm 離れた位置では著しく小さい。又、変位量が 1mm 以下の各位置における吸収水素量の分析値はいずれも 200wt. ppm 以上である。又、吸収水素量が多い位置ほど圧縮試験における変位量が小さい。

図 11 ~ 図 13 の結果から、内面酸化したジルカロイ被覆管の脆化挙動は被覆管中に吸収された水素量と対応していることが明らかである。又、酸化温度が同一で吸収水素量が同程度でも酸化時間が異なると被覆管脆化の程度が違ふ。

酸化時間 240 秒の場合について、100°C でのリング圧縮試験における変位量と吸収水素量の関係を図 14 に示す。データ点は酸化温度が 1000°C ~ 1167°C の場合には黒丸 (●)、932°C ~ 972°C の場合には白丸 (○) で示している。酸化温度が 1000°C ~ 1167°C の範囲である場合、吸収水素量が 200 ~ 300 wt. ppm までの範囲では吸収水素量が多くなるほど圧縮試験における変位量は小さくなる。又、吸収水素量が約 400wt. ppm 以上の値になると圧縮試験における変位量はすべて 0.5mm 以下の非常に小さな値にしかならない。吸収水素量が比較的少い (< 400wt. ppm) 場合には圧縮試験におけるバラツキがあるが、平均的には 200 ~ 300wt. ppm の水素を吸収した被覆管の圧縮試験における変位量は約 1.0mm に相当すると言える。酸化温度が 932°C ~ 972°C

の場合にも吸収水素量が多いほど圧縮試験における変位量が小さくなる傾向があるが、酸化温度が 1000°C 以上の場合に比べると吸収水素量が約 750 wt. ppm 以下では同程度の吸収水素量でも脆化の程度は小さい。又、この場合にはデータ点が少いが、リング圧縮試験で変位量が約 1.0 mm になるのは吸収水素量が約 500 ~ 700 wt. ppm のときであると考えられる。

本試験では延性評価のために、バースト後内面酸化した模擬燃料棒から 7 個 ~ 9 個のリング状試片を切り出し圧縮試験を行った。100°C でのリング圧縮試験によって判定した被覆管脆化の程度を酸化条件、即ち酸化温度及び酸化時間との関係で図 15 に示す。この図では、圧縮試験の結果、切り出したすべてのリング状試片の変位量が 1.0 mm より大きかった場合には○、変位量が 0.5 mm より大きく 1.0 mm 以下であるものが 1 個でもあれば△、0.5 mm 以下であるものが 1 個でもあった場合には×と表示している。従って各データ点は各々 1 本の模擬燃料棒の試験結果と対応している。著者等は被覆管の延性を評価する場合、100°C でのリング圧縮試験で試片の変位量が 0.5 mm ~ 1.0 mm 以下である場合を後述の理由により脆性と判定しているが、本実験の結果を酸化温度と酸化時間の 2 つのパラメーターで整理すると図 15 中の破線で示すように脆化した領域と延性を保持している領域にほぼ区分することができる。本実験の結果では、900°C - 8 分、1000°C - 3 分、1100°C - 1 分が内面酸化によって被覆管が脆化する酸化条件に相当すると言える。

4. 考 察

4.1 被覆管脆化の評価

燃料被覆管のような管状試験片の機械的性質を評価する方法としては管引張試験、曲げ試験、リング引張試験、リング圧縮試験、押上げ（フレアー）試験、中子拡管試験、内圧破裂試験等がある。著者等は試験試料の製作が簡単であり、試験自体も比較的手軽であること、又、ORNL 等の研究機関でも酸化したジルカロイ管の脆化挙動を調べるのに用いていることからリング圧縮試験を採用している。リング圧縮試験は三軸応力下の試験であるため、試験結果から材料の降伏応力等を直接求めることはできないが、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、一定の酸化を受けた被覆管が脆化するか否かの判定を下すことが重要であり、そのためには十分有意な試験法であると考えられる。

一方、ANL の T.F.Kassner 等は Integral Tube-burst / Thermal-shock Properties of Oxidized Zircaloy-4 Cladding と称する一連の実験で、高温水蒸気中で破裂させ引き続き酸化させた模擬燃料棒を浸水させ局部的な熱衝撃を加えている。そしてこの熱衝撃によって模擬燃料棒が破壊されたかどうかで被覆管の健全性を評価している。軽水炉の LOCA 時に燃料被覆管に加わる最大の外力は再冠水過程での熱応力であると考えられていることから彼等の手法は実際的であるように思えるが、このような評価法では模擬燃料棒のサイズや拘束状態がどれだけ実機燃料を模擬しているかが問題となる。又、Kassner 等は酸化後の急冷によって被覆管が破壊（fragmentation）するかどうかを健全性判定の基準としているが、彼等の実験では著しく脆弱な状態になるまで酸化させなければ被覆管が破壊することはないと考えられる。従って Kassner 等の判断

の場合にも吸収水素量が多いほど圧縮試験における変位量が小さくなる傾向があるが、酸化温度が 1000°C 以上の場合に比べると吸収水素量が約 750 wt. ppm 以下では同程度の吸収水素量でも脆化の程度は小さい。又、この場合にはデータ点が少いが、リング圧縮試験で変位量が約 1.0 mm になるのは吸収水素量が約 500 ~ 700 wt. ppm のときであると考えられる。

本試験では延性評価のために、バースト後内面酸化した模擬燃料棒から 7 個 ~ 9 個のリング状試片を切り出し圧縮試験を行った。100°C でのリング圧縮試験によって判定した被覆管脆化の程度を酸化条件、即ち酸化温度及び酸化時間との関係で図 15 に示す。この図では、圧縮試験の結果、切り出したすべてのリング状試片の変位量が 1.0 mm より大きかった場合には○、変位量が 0.5 mm より大きく 1.0 mm 以下であるものが 1 個でもあれば△、0.5 mm 以下であるものが 1 個でもあった場合には×と表示している。従って各データ点は各々 1 本の模擬燃料棒の試験結果と対応している。著者等は被覆管の延性を評価する場合、100°C でのリング圧縮試験で試片の変位量が 0.5 mm ~ 1.0 mm 以下である場合を後述の理由により脆性と判定しているが、本実験の結果を酸化温度と酸化時間の 2 つのパラメーターで整理すると図 15 中の破線で示すように脆化した領域と延性を保持している領域にはほぼ区分することができる。本実験の結果では、900°C - 8 分、1000°C - 3 分、1100°C - 1 分が内面酸化によって被覆管が脆化する酸化条件に相当すると言える。

4. 考 察

4.1 被覆管脆化の評価

燃料被覆管のような管状試験片の機械的性質を評価する方法としては管引張試験、曲げ試験、リング引張試験、リング圧縮試験、押広げ（フレアー）試験、中子拡管試験、内圧破裂試験等がある。著者等は試験試料の製作が簡単であり、試験自体も比較的手軽であること、又、ORNL 等の研究機関でも酸化したジルカロイ管の脆化挙動を調べるのに用いていることからリング圧縮試験を採用している。リング圧縮試験は三軸応力下の試験であるため、試験結果から材料の降伏応力等を直接求めることはできないが、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、一定の酸化を受けた被覆管が脆化するか否かの判定を下すことが重要であり、そのためには十分有意な試験法であると考えられる。

一方、ANL の T.F.Kassner 等は Integral Tube-burst / Thermal-shock Properties of Oxidized Zircaloy-4 Cladding と称する一連の実験で、高温水蒸気中で破裂させ引き続き酸化させた模擬燃料棒を浸水させ局部的な熱衝撃を加えている。そしてこの熱衝撃によって模擬燃料棒が破壊されたかどうかで被覆管の健全性を評価している。軽水炉の LOCA 時に燃料被覆管に加わる最大の外力は再冠水過程での熱応力であると考えられていることから彼等の手法は実際的であるように思えるが、このような評価法では模擬燃料棒のサイズや拘束状態がどれだけ実機燃料を模擬しているかが問題となる。又、Kassner 等は酸化後の急冷によって被覆管が破壊（fragmentation）するかどうかを健全性判定の基準としているが、彼等の実験では著しく脆弱な状態になるまで酸化させなければ被覆管が破壊することはないと考えられる。従って Kassner 等の判断

は脆化判定基準としては疑問があり、少くとも安全側ではないように思われる。

著者等は 100°C におけるリング圧縮試験でリング試片に割れが入るまでの変位量で延性の評価を行っている。具体的には 2.3 で述べたように $d_{0.8}$ で評価しているが、 $d_{0.8}$ の値が 0.5~1.0mm 以下である場合を脆化と判定している。この判定基準は以下に述べる 2 つの実験事実に基づいている。第一に安全評価指針で定められている被覆管酸化の上限値 (1200°C, 15%) まで高温水蒸気流中で酸化させたジルカロイ管の圧縮試験における変位量が 1mm 程度であること⁽⁶⁾、第二にリング圧縮試験では酸化の度合いが大きいものほど割れが入るまでの変位量が小さくなるが、図 16 に模式的に示すように変化量 0.5~1.0mm 程度を境にして変位量の変化の様相が異なること、言い換えれば 0.5~1.0mm の変位量は延性と明らかな脆性の中間に相当していると考えられることである。(図 14 参照)

リング圧縮試験で圧縮破壊した試片の破面を走査電顕で観察した。その代表的な例を図 17 に示す。(a)、(b)とも 1167°C で 4 分間酸化させた同一の模擬燃料棒から切り出したリング状試片の破面である。(a)は破裂開口部中心から約 60mm 離れた位置であり、圧縮試験における変位量は 4.7mm、水素吸収量は 30wt. ppm である。一方 (b)は破裂開口部中心から約 15mm 離れた位置であり、変位量は 0.3mm、水素吸収量は約 1570wt. ppm である。 $\alpha \rightarrow \beta$ 変態温度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 (ZrO_2)、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および安定化 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。図 17 の (a) と (b) を比較すると酸化の量は同程度であり、 ZrO_2 層および安定化 α 相の厚さや破面状態に違いはないが、prior- β 相に相当する領域の破面状態は明らかに異なる。すなわち (a) は典型的な延性破面であるのに対し (b) は脆性破面である。リング圧縮試験における変位量の値を酸化ジルカロイ管が延性であるか脆性であるかの目安にすることの妥当性はこのように SEM による破面観察の結果からも裏付けられる。

4.2 内面酸化による被覆管脆化現象

内面酸化を模擬して行った滞留水蒸気中酸化実験の結果⁽⁷⁾では被覆管脆化の主な原因は被覆管中に吸収された水素による水素脆化であると結論できた。この結論は、水素吸収の生じない水蒸気流中で酸化させた被覆管と比較した場合、水素吸収の生じる滞留水蒸気中で酸化させた場合には酸化量が大幅に少なくても脆化すること、又、吸収水素量と脆化の程度とが極めて良い対応を示したことから導き出したものである。更に、この結論はジルカロイ中の酸素と水素の拡散速度を比較検討した結果⁽⁷⁾によっても裏付けられた。本実験に於いても内面酸化による被覆管脆化の主因が吸収水素による水素脆化であることは図 11~13 および図 14 から明らかである。即ち、図 11~13 の結果は次のようにまとめることができる。

- (1) 被覆管の延性の低下が見られる範囲は内面酸化の及んでいる範囲とほぼ一致する。しかし、酸化の程度と延性低下の程度は対応しない。
 - (2) 吸収水素量と被覆管脆化の程度は極めて良く対応する。
 - (3) 酸化温度が同一で吸収水素量が同程度でも酸化時間が異ると被覆管脆化の程度が違う。
- 又、図 14 の結果を検討すると、
- (4) 吸収水素量と脆化の程度は良く対応する。

- (5) (被覆管が脆化する目安をリング圧縮試験における変位量 ($d_{0.8}$) が 0.5 ~ 1.0mm の場合に相当すると考えると) ジルカロイが脆化する吸収水素量は酸化温度 1000°C 以上では 200 ~ 300 wt. ppm, 酸化温度がより低い場合には 500 ~ 750 wt. ppm である。

吸収水素量が同程度でも酸化温度や酸化時間が異なると被覆管脆化の程度が違うという事実から合わせ考えると内面酸化による脆化は吸収水素量によってのみ決まるわけではない。しかし、金属組織の違いや酸素による脆化も考慮する必要はあるものの、これらの諸因子は被覆の脆化にある程度の影響を及ぼすものであり、内面酸化が生じた場合の被覆管脆化の主因は吸収水素による水素脆化であると結論できる。

図 18 に金属組織を観察した結果を示す。組織観察に用いた試料は 1059°C で 4 分間酸化させた模擬燃料棒から切り出したものであり、水素分析の結果では吸収水素量は 700 wt. ppm である。(A), (B) は金属顕微鏡写真で、(B) は (A) を 4 倍に拡大したものである。この結果から被覆管の内部金属組織はすべて幅数 μm ~ 十数 μm の針状 prior- β 結晶になっていることがわかる。(C), (D) は TEM で観察した透過組織である。(C) で見られる幅 1 μm 程度の暗い領域は針状 prior- β 結晶の結晶粒界部分に相当すると考えられる。(C) の暗い領域を更に拡大して観察した結果が (D) であるが、1 μm 以下の微細な析出物が見られる。この析出物は X 線回析の結果から δ -ZrH_{1.5} であることが確認されている。従って内面酸化が生じた場合の被覆管脆化は prior- β 結晶粒界や粒界近傍に析出した微細な水素化物の存在に起因するものであると考えられる。又、内面酸化における水素脆化は原子炉稼動条件下で生成する比較的粗大な線状あるいは板状の水素化物による水素脆化とは区別して考える必要がある。

4.3 被覆内面における水素吸収

4.3.1 水素の発生位置と吸収位置

表 4 に No. 89 (1050°C, 150 秒酸化) と No. 91 (1059°C, 240 秒酸化) について、被覆内面に形成された酸化膜厚さの測定値、酸化膜厚さから計算した重量増と発生水素量、吸収水素量の分析値、更に水素の吸収比を示す。水素吸収比は各位置における吸収水素量をその位置における発生量で除した値である。吸収水素量は分析値から 20 wt. ppm (初期含有量) を差し引いた値としている。又、発生水素量は吸収水素量と直接比較できるようにするために便宜上、発生した水素がすべて発生位置でジルカロイ中に吸収されると仮定した場合の被覆中の含有量として表わしている。本実験における水素分析は圧縮試験で圧縮破壊したリング状試片の破片の一部 (破片の中心部約 5 mm 角) について行っており、その分析値をリング状試片全体の代表値としている。しかし、表 3 に示す分析結果から明らかなように、吸収水素量は破裂開口中心からの距離の違いによって大きく変化する。従って吸収された水素がリング状に切り出した一つの試片中で一様に分布しているとは考え難い。そのためにこのような仮定に基づく計算は比較的大きな誤差を含む可能性がある。

しかし、ある程度定量的な議論をすることは可能であろう。

No. 89 の場合、発生水素量は破裂開口部で 1200 wt. ppm である。破裂開口中心から 15 mm 離れた位置では 900 wt. ppm, 30 mm 離れた位置では 500 ~ 600 wt. ppm 程度であるが、それ以上離れると著しく少なくなり 45 mm 離れた位置で 20 wt. ppm 程度、60 mm 離れた位置では 0 である。一

方、吸収水素量は破裂開口部では 80wt. ppm に過ぎないが、15～45mm 離れた位置で破裂開口部における吸収量より多くなる。特に破裂開口部中心から 30mm 離れた位置での吸収は顕著であり 1000～2000wt. ppm の値となっている。又、発生水素量と吸収水素量の比(吸収比)を計算した結果から破裂開口部では発生量の 7%、15mm 離れた位置ではそれぞれ 20%、56% が吸収されていることがわかる。破裂開口部中心から 30mm および 45mm 離れた位置では吸収量の方が発生量よりはるかに多くなっている。酸化の及んでいる被覆内面で発生した全水素量と全体の吸収量の比(Average or Total Absorption Ratio)を計算すると 1.14 になる。この計算は比較的大きな誤差を含み得るため吸収量の方が発生量より多いという矛盾した結果になったが、実際には 1.0 以下で 1.0 に近い値であると考えられる。この結果から被覆内面の酸化に伴って発生した水素の大部分がジルカロイ被覆中に吸収されると考えることができる。又、発生位置と吸収位置は必ずしも一致しない。

No.91 についても同様の計算をした。計算結果に基づいて発生水素量と吸収水素量の関係を図 19 に示す。この場合にも破裂開口部および破裂開口中心から 15mm 離れた位置での吸収率は低く、各々 3%、20% 程度に過ぎない。30mm 離れた位置に吸収のピークが見られる。特に破裂開口中心から上方に 30mm 離れた位置における吸収量は多く、発生量の 2.5 倍になっている。このことから破裂開口近傍で発生し、その位置では吸収されなかった水素が破裂開口から燃料棒端部方向へ移動し一定の位置で被覆中に吸収されると予想できる。No. 91 についての平均水素吸収率は 52% と計算される。又、No. 87 (1050°C, 90 秒酸化) の場合には 78% と計算される。これらは No. 89 の場合に比べると低い値となっているが、いずれの場合も被覆内面で発生した水素の 50% 以上が被覆に吸収されると計算され、内面で発生した水素の多くがジルカロイ中に吸収されると考えるのが妥当であろう。

本実験では 15 本の模擬燃料棒について水素分析を行ったが、それらの中で水素吸収のピークが破裂開口中心から 45 mm 離れた位置にあるものが 1 本、30 mm 離れた位置にあるものが 10 本、15 mm 離れた位置にあるものが 4 本という結果になった(表 3)。破裂開口中心から 30mm 離れた位置に吸収のピークがある場合が一番多いが、吸収のピーク位置は酸化温度と水蒸気流量の違いによって変化する傾向がある。

964°C～1167°C の各温度で 240 秒間酸化した模擬燃料棒について被覆中に吸収された水素の軸方向分布を破裂開口中心からの距離との関係で図 20 に示す。水蒸気流量はいずれの場合にも 1.60 g/cm²・min である。酸化温度が 964°C の場合、水素吸収のピークは破裂開口中心から 45mm 離れた位置にある。1008°C、1059°C の場合には 30mm 離れた位置である。又、これらの場合には、ピーク位置以外での吸収量は少ない。1111°C、1167°C と酸化温度が高い場合、吸収ピークは 15 mm 離れた位置にあり、破裂開口部や 30mm 離れた位置での吸収量も多い。これらの結果から酸化温度が高温であるほど水素吸収のピークは破裂開口部に近くなり、多量の水素を吸収する範囲も広がることわかる。

図 21 に酸化温度、酸化時間については条件(1100°C, 240 秒)が同一で水蒸気流量のみ約 5 倍の違いがある 2 つの場合について被覆中に吸収された水素の軸方向分布を示す。水蒸気流量が少ない(0.13g/cm²・min) No. 27 の場合、破裂開口部における吸収水素量は 950wt. ppm である。

又、水素吸収のピークは破裂開口中心から 15mm 離れた位置にある。一方、水蒸気流量の比較的多い(0.66g/cm²・min) No. 30 の場合、破裂開口部における吸収水素量は 310wt. ppm であり、

No. 27 の場合より少ない。又、水素吸収のピーク位置は破裂開口中心から 30mm 離れた位置にある。

No. 27 と同一条件である No. 19 の場合でも吸収のピーク位置は破裂開口中心から 15mm 離れた位置であり、No. 30 と同一条件である No. 22 の場合にも 30mm 離れた位置がピークとなっている(表 3)。これらの結果から、酸化温度、酸化時間が同一である場合、水蒸気流量の少ない方が破裂開口部における水素吸収が多く、水素吸収のピーク位置も破裂開口部に近くなると言える。

酸化温度の違いと水蒸気流量の違いで水素吸収のピーク位置が変化するという事実は被覆内面近傍の雰囲気の違いが水素吸収挙動に影響を与えていることを示唆するものである。本実験における模擬燃料棒破裂開口部近傍の内面雰囲気は水蒸気・水素・不活性ガスの混合雰囲気である。一方、実機燃料の場合には水蒸気・水素・不活性ガス・F.P. ガスの混合雰囲気になると予想される。内面酸化現象に及ぼす F.P. ガスの影響は現状では明らかではないが、破裂開口部近傍の燃料ペレットと被覆の間の空隙は比較的短時間のうちにその殆どが水蒸気と水素の混合雰囲気になってしまうと予想されるので、酸化・水素吸収のメカニズムに本質的な影響を与える可能性は少ないと思われる。又、不活性ガスの存在も本質的な影響を及ぼすことはないと考えられる。従って内面酸化現象に関して被覆内面近傍の雰囲気の性質を便宜上水素と水蒸気の体積比で表現することは的外れではないであろう。今、仮に被覆内面近傍の雰囲気中に占める水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) が水素吸収の生じ易さに影響する、つまり V_{H_2} / V_{H_2O} の値が大きいほど水素吸収速度が大きくなるか、あるいは V_{H_2} / V_{H_2O} がある一定の値に到達すると水素吸収速度が急激に大きくなるとすると水素吸収のピーク位置が酸化温度や水蒸気流量の違いによって変化することをある程度定性的に説明できる。被覆内面近傍の雰囲気中に占める水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) はその位置における水素の発生速度と水蒸気の流入速度によって変化する。又、他の位置で発生した水素の流入がある場合にはその流入速度も影響を与える。図 22 (a) に模式的に示すように雰囲気中に占める水蒸気の体積割合 (V_{H_2O}) は破裂開口部で一番大きく破裂開口部から離れるほど小さくなる。一方、水素発生速度は破裂開口部で最大であるものの、破裂被覆管内部では一定の範囲(内面酸化の及ぶ範囲)にわたって破裂開口部から燃料棒端部方向への水蒸気の流れがあるために破裂開口部近傍で吸収されなかった水素が奥まで流入し、雰囲気中に占める水素の割合 (V_{H_2}) は破裂開口中心からある程度離れた位置で最大になる。従って、水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) は図 22 (b) に模式的に示すように破裂開口部では小さく、一定の範囲にわたっては破裂開口中心から離れるほど大きくなると予想される。

水蒸気の流入条件が同一で酸化温度が異なる場合、酸化温度の違いによって水素吸収のピーク位置が変化することは図 23 (a₁), (a₂) で模式的に説明することができる。水蒸気の流入量が十分であれば水素の発生速度は酸化温度が高いほど大きい。従って酸化温度 T が $T_1 > T_2$ であれば雰囲気中に占める水素の体積割合 V_{H_2} は $V_{H_2}(T_1) > V_{H_2}(T_2)$ となる。一方、水蒸気流入条件が同一でしかも流入量が十分である場合、雰囲気中に占める水蒸気の割合 V_{H_2O} は水素発生量が少ない場合の方が大きくなり、 $V_{H_2O}(T_2) > V_{H_2O}(T_1)$ となるであろう。従って雰囲気中に占める水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) は図 23 (a₂) に示すように酸化温度が高温である方が破裂開口中心に近い位置で高い値になる。

酸化温度が同一で水蒸気流量即ち水蒸気流入条件が異なる場合に水素吸収ピーク位置が変化することについても図 23 (b₁), (b₂) で同様に説明できる。水蒸気流量 F について、 $F_1 > F_2$ である

とすると雰囲気中に占める水蒸気の体積割合 (V_{H_2O}) は $V_{H_2O}(F_1) > V_{H_2O}(F_2)$ となる。水蒸気流入量が十分であれば、酸化温度条件が同一である場合、水素発生速度は同一であるので雰囲気中に占める水素の体積割合 (V_{H_2}) は水蒸気流入の少ない場合の方が大きくなり、 $V_{H_2}(F_2) > V_{H_2}(F_1)$ となる。従って雰囲気中に占める水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2}/V_{H_2O}) は図 23 (b₂) に模式的に示すように水蒸気流量の小さい場合の方が破裂開口中心に近い位置で高い値になる。

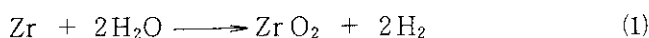
被覆内面における水素吸収が雰囲気中における水素と水蒸気の体積比によって影響されるとするこのような考え方は著者等が実験的に示した結果⁽⁸⁾とも一致するものである。著者等は LO-CA 時内面酸化で燃料被覆管内部が水素と水蒸気の混合雰囲気になると予想し、水素・水蒸気の体積比 (V_{H_2}/V_{H_2O}) を様々に変化させて混合雰囲気下でジルカロイ酸化実験を行った。その結果 1000°C ~ 1100°C の温度範囲で水素が水蒸気の 2 ~ 4 割の体積を占めるようになるとジルカロイ中への水素吸収が急増し、それに伴って脆化が著しくなることを見出している。

従って、この実験結果に基づいて図 23 (a₂), (b₂) を検討すると、酸化温度が高い (あるいは水蒸気流量の少ない) 場合には破裂開口中心により近い位置 (P₁) で V_{H_2}/V_{H_2O} が臨界値に到達しその位置で水素吸収が急増し、更に奥まで流入する水素は少なくなるため、その位置が水素吸収のピーク位置になると考えることができる。

酸化温度が 1050°C ~ 1059°C と同程度で酸化時間が異なる (90 秒, 150 秒, 240 秒) 3 本の模擬燃料棒について、被覆中に吸収された水素の軸方向分布を図 24 に示す。水蒸気流量はいずれの場合も 1.60 g/cm²・min で同一である。水素吸収のピーク位置はすべて破裂開口中心から 30mm 離れた位置にある。従ってこの結果から酸化温度と水蒸気流量が同一条件の場合、内面酸化開始後比較的短時間のうちに水素が吸収されやすい位置が決まる、つまり水素吸収を促進させるような特定の雰囲気が破裂開口部から一定距離離れた位置に形成されると考えられる。そしてこのような雰囲気は LOCA で燃料被覆管が 1000°C 程度の高温に保持されると計算される数分の間は定常的なものであろう。

4.3.2 水素吸収のメカニズム

軽水炉 LOCA 時に燃料被覆管は被覆管内外の圧力差が増大し、高温では被覆の強度が著しく低下することから破裂する場合があると予想される。燃料被覆管内の圧力は破裂直後に管外の圧力と同じになる。このことは単純化した仮定に基づいて計算した結果⁽⁶⁾で 1 秒以内に $P_o = P_a$ (P_o ; 管内の圧力, P_a ; 管外の圧力) となること、更に模擬燃料集合体破裂実験においても圧力変換器によって内圧を 2 秒毎に測定した結果⁽⁷⁾、破裂後 2 秒後には $P_o = P_a$ となっていることから予想できる。従って破裂後数秒以内には水蒸気が破裂燃料棒内に侵入し、式(1)の反応によって内面の酸化が始まる。



内面における酸化反応自体は被覆管外面における反応と同じであるが、発生した水素が水蒸気の流れによって反応面近傍から運び去られることが少なく滞留した水素・水蒸気混合雰囲気下での酸化であるという点で特異である。このため破裂開口近傍の内面では酸化の進行に伴って水素濃度の高い雰囲気が形成され被覆中への水素吸収が生じ易くなる。ジルカロイ中に水素が吸収されると吸収水素の寄与分だけ被覆管内部の圧力が低下する。このようにして生じる圧力差によ

って外部の水蒸気が流入し、内面酸化反応は連続的に進行することになる。内面に形成された酸化膜の全体積から反応時間中に被覆内面に流入した全水蒸気量を計算することができる。1059°Cで240秒間酸化させた結果に基づいて計算すると、酸化反応が及んでいる被覆管内部の空隙（約2cc）に存在する水蒸気は約1秒間で消費されてしまうことがわかる。従って被覆管内面では、酸化反応の進行中には破裂開口部から燃料棒端部へと向かう水蒸気の流れがある。その結果、破裂開口からの距離の違いにより各位置での水素・水蒸気の体積比（ V_{H_2}/V_{H_2O} ）が異なり被覆中への水素吸収量が違ってくると考えられる。このような内面酸化－水素吸収の挙動は酸化温度や水蒸気流量などの違いにより様々に変化すると予想されるが、図25にそのメカニズムを単純化して図示する。

破裂開口近傍をPosition1、破裂開口からある程度（～30mm）離れた位置をPosition2とする。図10の結果から明らかなように被覆管内面に形成される酸化膜の厚さはPosition2よりもPosition1の方が厚い。従って酸化反応に伴って発生する水素の量（generated hydrogen）もPosition1の方が多い。一方、破裂燃料棒内では破裂開口部から燃料棒端部へと向かう水蒸気の流れがある。流入した水蒸気の多くは破裂開口部近傍（Position1）で消費され更に奥まで流入する量は少ない。又、破裂開口部近傍で発生した水素のうち被覆中に吸収されない部分は水蒸気の流れによって奥まで流入する。従って破裂被覆管内部の各位置における水素・水蒸気体積比（ V_{H_2}/V_{H_2O} ）は破裂開口からの距離によって異なりPosition1よりもPosition2において高い値になる。一定位置における水素・水蒸気の体積比（ V_{H_2}/V_{H_2O} ）が一定の臨界値以上になるとその位置での水素吸収が急増する。従って図25に模式的に示すようにPosition2における発生水素量はPosition1より少ないもののPosition2における吸収水素量は V_{H_2}/V_{H_2O} が臨界値以上になった後急増し、Position1よりも多くなる。

4.4 内面酸化による脆化と被覆管の健全性

図26に本実験の結果から得られたリング圧縮変位1.0mmに相当する酸化条件を示す。又、古田等が水素吸収のない条件（被覆管の内外両面とも水蒸気流中で酸化）で酸化させた試片を圧縮試験し求めた変位量1.0mmの酸化条件⁰⁸、更に安全評価指針で酸化量計算のために採用しているBaker-Justの式を用いて計算した15%酸化条件（被覆肉厚725 μ mの場合）も合わせて示す。

現行の安全評価指針では

- (1) 燃料被覆管温度の計算値の最高値が1200°C以下でなければならない。
- (2) Zr－水反応による被覆管の化学量論的酸化量がBaker－Justの式を用いて計算した場合、被覆管厚さの15%以下でなければならない。

という基準を定めている。この基準はLOCA時に燃料被覆管が酸化によってその延性を極度に失うことなく、炉心の冷却可能形状を保持し続けることを保証するために、制定時まで明らかにされていたジルカロイ－水反応実験データに基づいてジルカロイが著しく脆化するに至らないと判定される上限の酸化条件にある程度の余裕を見込んで設定されたものである。この基準は水素吸収のない場合即ち酸化と酸素吸収及び金属組織変化による脆化に関しては図26に示すように変位量1.0mmに相当する酸化条件よりも安全側（1200°C以下の場合）にあり現時点でも妥当なもの

である。しかし、内面酸化に伴う水素吸収が生じる場合には本実験の結果から明らかなように、被覆が脆化するか否かという立場で論ずる限りにおいては安全側であるとは言えない。ただし、被覆が脆化すれば炉心はもはや冷却可能な形状 (coolable geometry) を保持し得ないとも言えない。即ち、酸化および水素吸収によって被覆が著しく脆化した場合にも、再冠水時に加わると予想される応力に耐えることができれば炉心は冷却可能な形状を保つことになるし、場合によっては再冠水時の応力で被覆管が破断したとしても破断の程度によっては冷却可能な形状を保持し続けることになる。従ってLOCA時に炉心が冷却可能な形状を保つかどうかという問題を被覆が脆化するか否かというあいまいな概念で判断するのではなく、どの程度の応力に被覆が耐えれば良いかあるいはどのような破断形状であれば冷却可能であるかという点まで議論を進める必要がある。

軽水炉の稼動条件下での推定侵入水素量はBWRで最大150wt. ppm、PWRでは最大250wt. ppm程度と考えられており、⁽⁹⁾ジルカロイ中の水素溶解度が極めて小さいため、溶解しえない水素は比較的粗大な水素化物として析出する。LOCA時に被覆管の温度が $\alpha - \beta$ 変態温度以上になると水素化物はマトリックス中に再溶解し冷却過程でprior- β 相粒界近傍に微細な水素化物として再析出することが本実験の結果から予想される。図14から明らかなようにprior- β 相中に析出した水素化物はその含有量が250wt. ppm程度でも被覆を著しく脆化させる。従って内面酸化に伴う水素吸収がなくても被覆の温度が1000°C程度以上になる場合には著しい脆化が起こり得る。又、内面酸化による水素吸収が少ない位置でも内面酸化が生じる前に既に被覆中に吸収されていた水素量がプラスされるため脆化の程度が大きくなる可能性がある。このような現象はLOCAに限らずPCM (Power Cooling Mismatch) 等の原子炉事故においても考慮する必要がある。

4.5 今後の問題点

本実験の結果を軽水炉LOCA時における燃料被覆管挙動との関連で考える場合、実際のLOCA条件との違いが問題となる。厳密にはLOCA条件そのまま実験を行わなければ確かなことは言えない。しかし、LOCAは仮想事故であり、LOCA状態を解析すること自体容易ではない上、炉型の違いや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時の酸化条件、特に破裂被覆管内面の酸化条件とは次のような点で異なる。

- (1) 核燃料 (UO₂ ペレット) がない。
- (2) 核分裂生成物 (F. P.) がない。
- (3) 中性子照射効果がない。
- (4) 水蒸気圧、水蒸気流速が異なる。

(1)についてはUO₂ ペレットの存在で実験結果がどの程度左右されるかを検討しなければならない。予想されるLOCA時の被覆温度条件 (~1000°C) ではUO₂-水蒸気反応の反応速度は⁽²⁾ジルカロイ-水蒸気反応速度よりかなり小さいことが知られている。しかし、内面酸化による被覆脆化の主因が吸収水素による水素脆化であることを考慮すると、UO₂-水蒸気反応に伴って発生する水素が被覆の脆化挙動に影響を及ぼす可能性は否定できない。しかもその影響は脆化を促進するものである可能性が強いので、UO₂ ペレットが存在しない状態での本実験の結果が実際以上

に厳しいものであるとは言えない。(2)について、本実験における内面の雰囲気は水蒸気・水素・不活性ガスの混合雰囲気であるが、LOCA条件では水蒸気・水素・不活性ガス・F. P. ガスの混合雰囲気であると予想される。内面酸化現象に及ぼすF. P. ガスの影響は現状では明らかではないが、破裂開口部近傍の燃料ペレットと被覆の間の空隙は破裂後比較的短時間のうちに水蒸気と水素の混合雰囲気になってしまうと予想されるので、F. P. ガスが破裂開口近傍における酸化・水素吸収のメカニズムに本質的な影響を与える可能性は少ないと思われる。

(3)、ジルカロイ被覆管は原子炉運転中に核分裂で発生する中性子等の照射によって生ずる照射欠陥のために延性が低下する。しかし、照射欠陥は回復・再結晶が生じる高温では比較的短時間のうちに消滅・回復してしまうことが知られており、LOCAで内面酸化が生じるような高温領域では被覆中に存在することはないと考えられる。従って中性子照射効果が内面酸化による被覆管脆化挙動に影響を与えることはない。

(4)、本実験は大気圧(1気圧)で行った。LOCA解析の結果ではLOCA初期を除けば、炉内圧力は1～3気圧程度である。被覆管が破裂し内面酸化が生じるのはLOCAの初期段階ではないので1気圧での実験はLOCA条件とかけ離れたものではない。LOCA時における水蒸気流速はブローダウン(blowdown)過程、再浸水(refill)過程で大きく変化し、各過程においても平均的な流速を計算するのは困難である。従って水蒸気流速に関して本実験の条件(0.13～1.60g/cm²・min)が十分なものであるか否かは断定できない。しかし、本実験の結果からみて仮に水蒸気流速が大幅に変化したとしても破裂被覆管内面で内面酸化とそれに伴う被覆中への水素吸収が生じなくなるとは考えられない。

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条件に近づけた実験を行な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LOCA時に燃料棒が破裂した場合に生じる内面酸化による被覆管脆化挙動を明らかにするために、水蒸気中模擬燃料棒破裂酸化実験を行ない以下の結論を得た。

- (1) 内面酸化した燃料被覆管の脆化は被覆中に吸収された水素による水素脆化である。
- (2) 酸化温度が高く酸化時間が長いほど内面酸化の及ぶ範囲が広がり、脆化する範囲も広がった。
- (3) 100°Cにおけるリング圧縮試験の結果、ジルカロイ被覆管は酸化温度が1000°C以上の場合、吸収水素量200～300wt. ppm以上で脆化していた。酸化温度が932°C～972°Cの場合には500～750wt. ppm以上で脆化していた。
- (4) 被覆中に吸収された水素はprior-β結晶粒界近傍に1μm以下の微細な水素化物(δ-ZrH_{1.5})として析出していた。
- (5) 破裂開口中心から15～45mm離れた位置に水素吸収のピークがあった。水素吸収のピーク位置は酸化条件(酸化温度、水蒸気流量)の違いによって変化し、酸化温度が高いほど水蒸

に厳しいものであるとは言えない。(2)について、本実験における内面の雰囲気は水蒸気・水素・不活性ガスの混合雰囲気であるが、LOCA条件では水蒸気・水素・不活性ガス・F. P. ガスの混合雰囲気であると予想される。内面酸化現象に及ぼすF. P. ガスの影響は現状では明らかではないが、破裂開口部近傍の燃料ペレットと被覆の間空隙は破裂後比較的短時間のうちに水蒸気と水素の混合雰囲気になってしまうと予想されるので、F. P. ガスが破裂開口近傍における酸化・水素吸収のメカニズムに本質的な影響を与える可能性は少ないと思われる。

(3)、ジルカロイ被覆管は原子炉運転中に核分裂で発生する中性子等の照射によって生ずる照射欠陥のために延性が低下する。しかし、照射欠陥は回復・再結晶が生じる高温では比較的短時間のうちに消滅・回復してしまうことが知られており、LOCAで内面酸化が生じるような高温領域では被覆中に存在することはないと考えられる。従って中性子照射効果が内面酸化による被覆管脆化挙動に影響を与えることはない。

(4)、本実験は大気圧(1気圧)で行った。LOCA解析の結果ではLOCA初期を除けば、炉内圧力は1～3気圧程度である。被覆管が破裂し内面酸化が生じるのはLOCAの初期段階ではないので1気圧での実験はLOCA条件とかけ離れたものではない。LOCA時における水蒸気流速はブローダウン(blowdown)過程、再浸水(refill)過程で大きく変化し、各過程においても平均的な流速を計算するのは困難である。従って水蒸気流速に関して本実験の条件(0.13～1.60g/cm²・min)が十分なものであるか否かは断定できない。しかし、本実験の結果からみて仮に水蒸気流速が大幅に変化したとしても破裂被覆管内面で内面酸化とそれに伴う被覆中への水素吸収が生じなくなるとは考えられない。

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条件に近づけた実験を行な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LOCA時に燃料棒が破裂した場合に生じる内面酸化による被覆管脆化挙動を明らかにするために、水蒸気中模擬燃料棒破裂酸化実験を行ない以下の結論を得た。

- (1) 内面酸化した燃料被覆管の脆化は被覆中に吸収された水素による水素脆化である。
- (2) 酸化温度が高く酸化時間が長いほど内面酸化の及ぶ範囲が広がり、脆化する範囲も広がった。
- (3) 100°Cにおけるリング圧縮試験の結果、ジルカロイ被覆管は酸化温度が1000°C以上の場合、吸収水素量200～300wt. ppm以上で脆化していた。酸化温度が932°C～972°Cの場合には500～750wt. ppm以上で脆化していた。
- (4) 被覆中に吸収された水素はprior-β結晶粒界近傍に1μm以下の微細な水素化物(δ-ZrH_{1.5})として析出していた。
- (5) 破裂開口中心から15～45mm離れた位置に水素吸収のピークがあった。水素吸収のピーク位置は酸化条件(酸化温度、水蒸気流量)の違いによって変化し、酸化温度が高いほど水蒸

気流量が少ないほど破裂開口中心に近い位置であった。

- (6) 内面酸化に伴なう被覆中への水素吸収は内面の雰囲気、特に水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) に影響されると考えられる。

謝 辞

本研究を行なうにあたり、水素分析を行なって下さった分析センター星野 昭、磯 修一の両氏に又、模擬燃料棒製作に協力していただいた工作課菊地泰二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) Hardy, D. G.: CONF-730304 (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-M 6181 (1975)
- (6) 本間功三, 橋本政男, 古田照夫, 大友 隆, 川崎 了: JAERI-M 6602 (1976)
- (7) 上塚 寛, 古田照夫, 川崎 了: JAERI-M 8081 (1979)
- (8) 本間功三, 未発表データ
- (9) 燃料安全研究委員会: JAERI-7247 (1977)
- (10) 鈴木元衛, 川崎 了, 古田照夫: JAERI-M 6879 (1977)
- (11) Furuta, T. and Kawasaki, S. : J. Nucl. Sci. Technol., 17 (3)p.243 (1980)
- (12) Bradhust, D. H. and Heuer, P. M. : J. Nucl. Mater., 55 (1975)
- (13) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : ANL-78-3 (1978)
- (14) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : ANL-79-48 (1980)
- (15) 本橋治彦, 古田照夫: JAERI-M 8649 (1980)
- (16) 小泉安郎: 私 信
- (17) 橋本政男: 私 信
- (18) 古田照夫, 川崎 了, 橋本政男, 大友 隆: JAERI-M 6601 (1976)
- (19) 原子力安全協会: 軽水炉用ジルカロイ被覆管のふるまい (1970)
- (20) Brassfield H. C. et al. : GEMP-482 (1968)
- (21) Northwood, D. O. : Atomic Energy Review 154, p.547 (1977)
- (22) Morize, P. et al. : CSNI 13 (1976)

気流量が少ないほど破裂開口中心に近い位置であった。

- (6) 内面酸化に伴なう被覆中への水素吸収は内面の雰囲気、特に水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) に影響されると考えられる。

謝 辞

本研究を行なうにあたり、水素分析を行なって下さった分析センター星野 昭、磯 修一の両氏に又、模擬燃料棒製作に協力していただいた工作課菊地泰二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) Hardy, D. G.: CONF-730304 (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-M 6181 (1975)
- (6) 本間功三, 橋本政男, 古田照夫, 大友 隆, 川崎 了: JAERI-M 6602 (1976)
- (7) 上塚 寛, 古田照夫, 川崎 了: JAERI-M 8081 (1979)
- (8) 本間功三, 未発表データ
- (9) 燃料安全研究委員会: JAERI-7247 (1977)
- (10) 鈴木元衛, 川崎 了, 古田照夫: JAERI-M 6879 (1977)
- (11) Furuta, T. and Kawasaki, S. : J. Nucl. Sci. Technol., 17 (3)p. 243 (1980)
- (12) Bradhurst, D. H. and Heuer, P. M. : J. Nucl. Mater., 55 (1975)
- (13) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : ANL-78-3 (1978)
- (14) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : ANL-79-48 (1980)
- (15) 本橋治彦, 古田照夫: JAERI-M 8649 (1980)
- (16) 小泉安郎: 私 信
- (17) 橋本政男: 私 信
- (18) 古田照夫, 川崎 了, 橋本政男, 大友 隆: JAERI-M 6601 (1976)
- (19) 原子力安全協会: 軽水炉用ジルカロイ被覆管のふるまい (1970)
- (20) Brassfield H. C. et al. : GEMP-482 (1968)
- (21) Northwood, D. O. : Atomic Energy Review 154, p. 547 (1977)
- (22) Morize, P. et al. : CSNI 13 (1976)

気流量が少ないほど破裂開口中心に近い位置であった。

- (6) 内面酸化に伴なう被覆中への水素吸収は内面の雰囲気、特に水素と水蒸気の体積比 (V_{H_2} / V_{H_2O}) に影響されると考えられる。

謝 辞

本研究を行なうにあたり、水素分析を行なって下さった分析センター星野 昭、磯 修一の両氏に又、模擬燃料棒製作に協力していただいた工作課菊地泰二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) Hardy, D. G.: CONF-730304 (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-M 6181 (1975)
- (6) 本間功三, 橋本政男, 古田照夫, 大友 隆, 川崎 了: JAERI-M 6602 (1976)
- (7) 上塚 寛, 古田照夫, 川崎 了: JAERI-M 8081 (1979)
- (8) 本間功三, 未発表データ
- (9) 燃料安全研究委員会: JAERI-7247 (1977)
- (10) 鈴木元衛, 川崎 了, 古田照夫: JAERI-M 6879 (1977)
- (11) Furuta, T. and Kawasaki, S. : J. Nucl. Sci. Technol., 17 (3)p.243 (1980)
- (12) Bradhust, D. H. and Heuer, P. M. : J. Nucl. Mater., 55 (1975)
- (13) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : ANL-78-3 (1978)
- (14) Chung, H. M. and Kassner, T. F. : ANL-79-48 (1980)
- (15) 本橋治彦, 古田照夫: JAERI-M 8649 (1980)
- (16) 小泉安郎: 私 信
- (17) 橋本政男: 私 信
- (18) 古田照夫, 川崎 了, 橋本政男, 大友 隆: JAERI-M 6601 (1976)
- (19) 原子力安全協会: 軽水炉用ジルカロイ被覆管のふるまい (1970)
- (20) Brassfield H. C. et al. : GEMP-482 (1968)
- (21) Northwood, D. O. : Atomic Energy Review 154, p.547 (1977)
- (22) Morize, P. et al. : CSNI 13 (1976)

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.

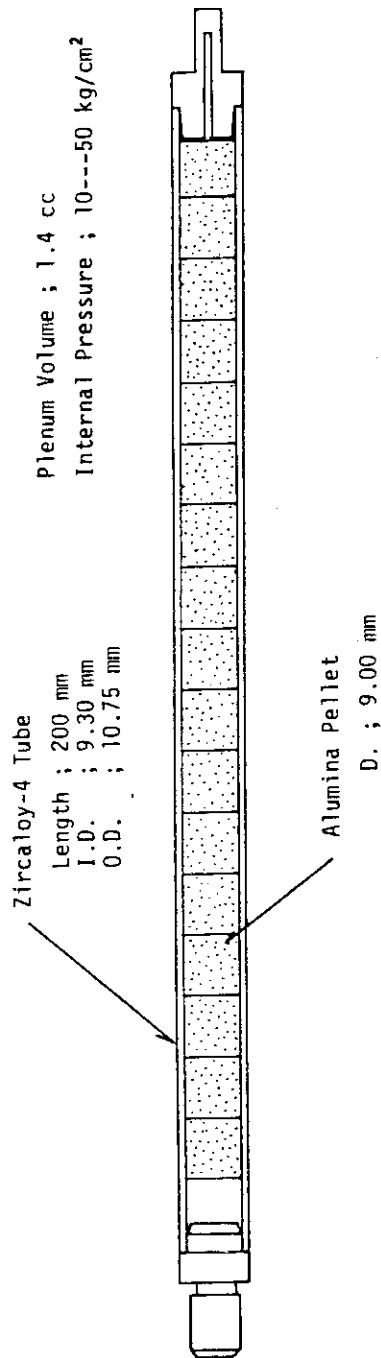


Fig.1 Schematic illustration of a simulated fuel rod

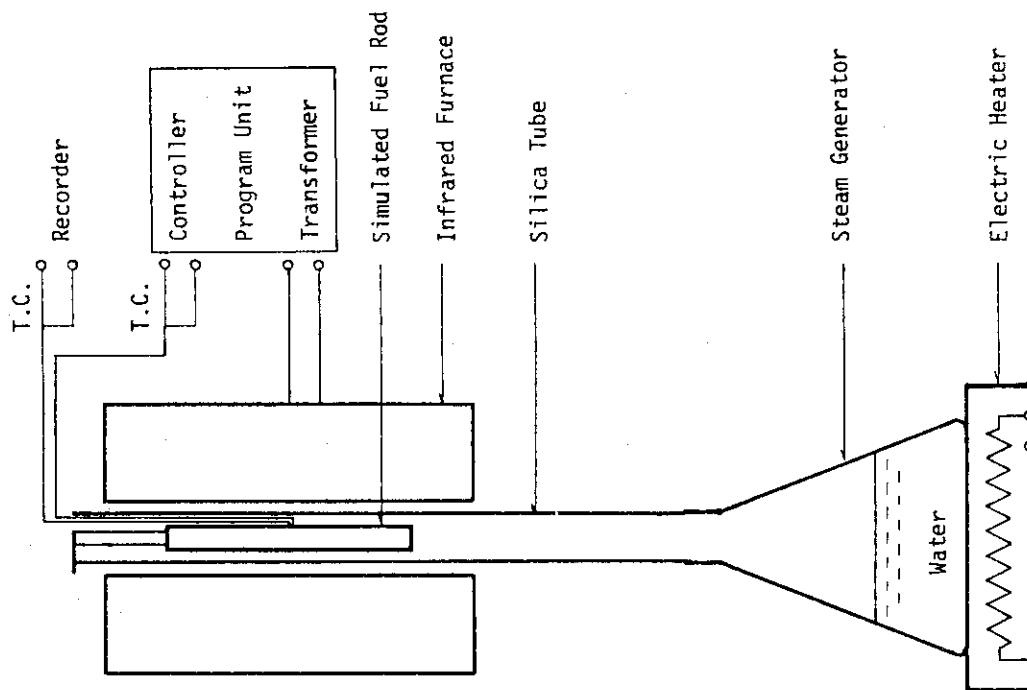


Fig.2 Apparatus for simulated fuel rod burst test

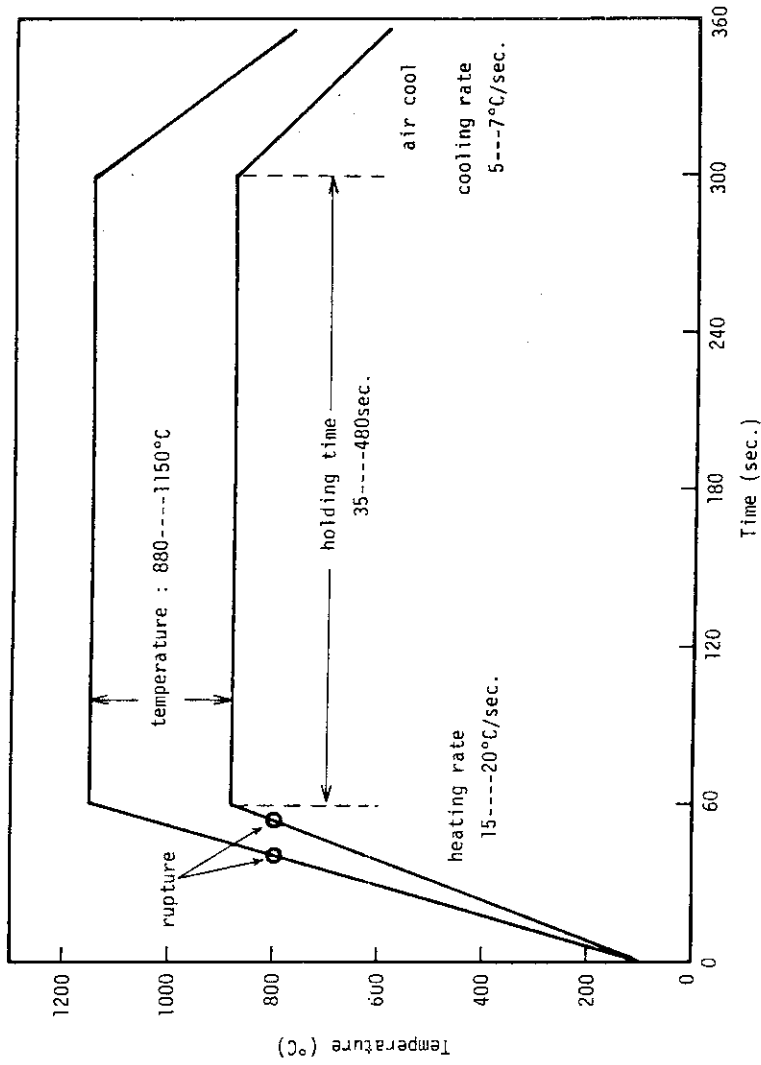


Fig.3 Examples of temperature history for simulated fuel rod burst test

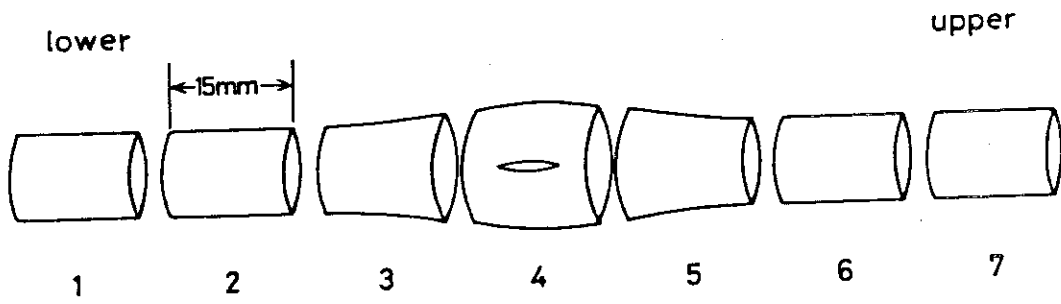


Fig.4 Schematic illustration of specimens used for a ring compression test

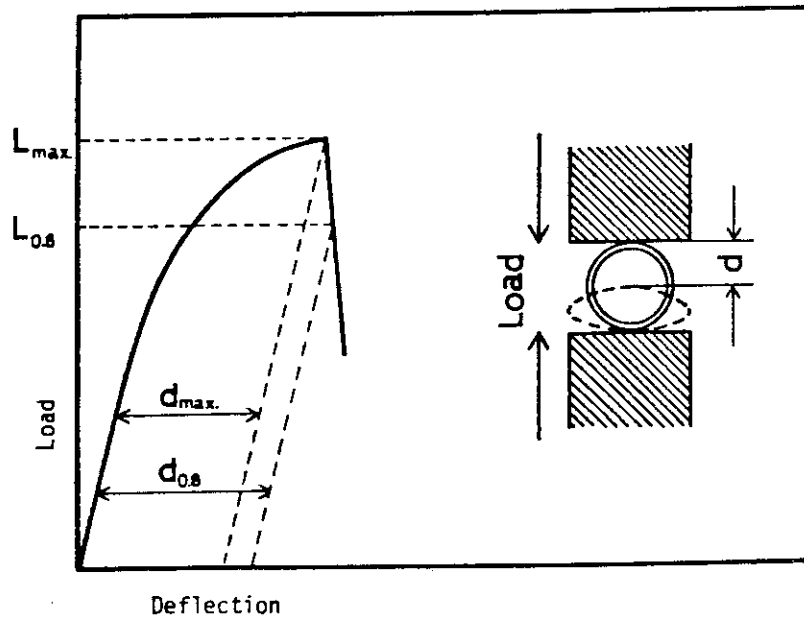


Fig.5 Schematic illustration of a ring compression test and a load-deflection curve

Table 2 Experimental condition and deflection of ring-like specimen as a function of distance from a rupture opening

Sample No.	Temp. Time (°C) (sec.)	Steam Flow Rate(g/cm ² min.)	Rupture Opening Area(mm ²)	Deflection at 100°C (mm)										
				-60	-45	-30	-15	0	15	30	45	60		
138	880	240	1.60	0.98	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	4.68	3.93
23	900	360	1.60	2.73	4.66	4.30	5.0	4.93	4.40	5.0	1.27	1.55	3.98	
151	900	480	1.60	3.62	1.26	3.96	1.86	4.82	5.0	4.57	3.96	0.94	0.94	
150	920	360	1.60	2.57	5.0	1.41	0.80	0.94	1.00	1.32	0.91	2.32	4.28	
156	932	240	1.60	2.03	5.0	0.80	0.20	4.24	5.0	4.56	0.42	1.52	5.0	
133	943	180	1.60	2.92	5.0	5.0	2.53	5.0	5.0	5.0	4.80	4.22	5.0	
95	964	240	1.60	----	----	0.44	4.80	5.0	5.0	5.0	2.88	0.74	5.0	
139	965	90	1.60	1.44	5.0	3.76	2.95	5.0	5.0	5.0	3.60	2.56	5.0	
135	970	150	1.60	4.94	4.69	2.58	4.02	5.0	5.0	5.0	1.45	2.16	3.47	
148	980	180	1.60	4.00	5.0	3.71	2.98	0.75	0.88	1.02	2.45	0.53	1.81	
149	980	210	1.60	3.04	5.0	1.78	3.22	0.80	5.0	5.0	2.94	2.44	3.20	
134	990	100	1.60	1.92	5.0	4.45	3.60	5.0	5.0	5.0	3.89	3.03	4.74	
88	1000	150	1.60	3.03	5.0	5.0	2.08	5.0	5.0	5.0	2.50	2.77	4.78	
92	1008	240	1.60	2.00	5.0	1.22	0.11	0.55	1.48	0.45	0.14	3.24	5.0	
146	1012	120	1.60	2.72	5.0	3.88	3.04	0.85	4.42	5.0	0.78	2.30	4.67	
147	1020	180	1.60	1.83	2.80	2.78	1.96	0.90	0.85	0.78	2.04	3.03	5.0	
16	1040	35	1.60	1.53	5.0	5.0	5.0	2.20	4.04	1.60	5.0	5.0	5.0	
87	1050	90	1.60	2.23	5.0	5.0	2.80	2.62	4.00	1.76	1.27	5.0	5.0	
89	1050	150	1.60	1.94	5.0	1.00	0.24	1.13	2.55	0.26	0.26	1.24	5.0	
91	1059	240	1.60	3.04	5.0	0.39	0.14	0.44	1.08	0.56	0.14	0.33	3.96	
25	1075	120	1.60	3.28	5.0	5.0	0.75	0.16	0.77	0.21	1.00	5.0	5.0	
24	1080	60	1.60	4.29	5.0	5.0	2.80	0.26	0.96	0.16	1.54	5.0	5.0	
86	1100	40	1.60	2.72	5.0	5.0	3.09	2.35	3.55	0.66	1.51	5.0	5.0	
90	1100	90	1.60	2.39	5.0	3.21	0.41	0.96	4.64	0.82	0.28	1.91	5.0	
93	1111	240	1.60	1.37	2.35	0.96	0.43	0.28	0.15	0.28	0.38	0.95	4.44	
14	1145	40	1.60	2.79	5.0	5.0	5.0	0.18	0.52	0.18	5.0	5.0	5.0	
15	1150	90	1.60	1.60	5.0	5.0	0.55	0.18	0.18	0.15	0.57	5.0	5.0	
94	1167	240	1.60	1.78	4.99	0.88	0.21	0.16	0.13	0.33	0.36	4.56	4.76	

Table 3 Deflection and absorbed hydrogen content of ring-like specimen as a function of distance from a rupture opening

Rod No.	Temp. Time (°C) (sec.)		Deflection at 100°C / (mm)				Absorbed hydrogen content (wt.ppm)				
			-60	-45	-30	-15	0	15	30	45	60
95	964	240	----	0.44 780	4.80 160	5.0 60	5.0 30	5.0 70	2.88 140	0.74 550	5.0 30
92	1008	240	5.0 10	1.22 110	0.11 1100	0.55 350	1.48 60	0.45 220	0.14 1150	3.24 120	5.0 40
87	1050	90	5.0 10	5.0 70	2.80 480	2.62 200	4.00 80	1.76 160	1.27 610	5.0 40	5.0 10
89	1050	150	5.0 10	1.00 300	0.24 2330	1.13 200	2.55 100	0.26 500	0.26 1290	1.24 180	5.0 10
91	1059	240	5.0 50	0.39 200	0.14 700	0.44 250	1.08 60	0.56 220	0.14 1350	0.33 240	3.96 160
93	1111	240	2.35 90	0.96 240	0.43 490	0.28 650	0.15 600	0.28 670	0.38 400	0.95 190	4.44 70
94	1167	240	4.99 20	0.88 110	0.21 1280	0.16 1230	0.13 850	0.33 1570	0.36 840	4.56 30	4.76 30
17	1000	240	----	0.92 220	0.42 700	1.78 240	1.80 130	1.45 250	0.42 870	0.98 400	----
28	1000	240	----	3.69 140	0.12 1340	0.30 640	2.00 110	0.68 260	0.18 1400	4.44 100	----
20	1050	240	----	5.0 130	0.18 1280	0.23 840	2.00 140	0.16 730	0.13 2280	4.80 150	----
21	1070	240	----	0.82 180	0.20 1740	0.20 430	1.54 20	0.40 210	0.12 1940	0.64 260	----
19	1100	240	----	3.68 150	1.10 310	0.15 770	0.20 610	0.24 640	0.83 360	3.81 120	----
27	1100	240	----	5.0 100	0.19 810	0.28 1100	0.44 950	0.24 2110	0.29 1860	5.0 70	----
30	1100	240	----	4.52 10	0.20 1550	0.40 1080	0.29 310	0.40 820	0.15 1290	3.76 100	----
22	1100	240	----	5.0 90	0.29 860	0.15 800	1.23 250	0.22 910	0.11 1790	3.30 110	----

* Steam Flow Rate : 1.60g/cm²min. for Rod No. 95, 92, 87, 89, 91, 93, 94,
0.66g/cm²min. for Rod No. 21, 30, 22,
0.13g/cm²min. for Rod No. 17, 28, 20, 19, 27,

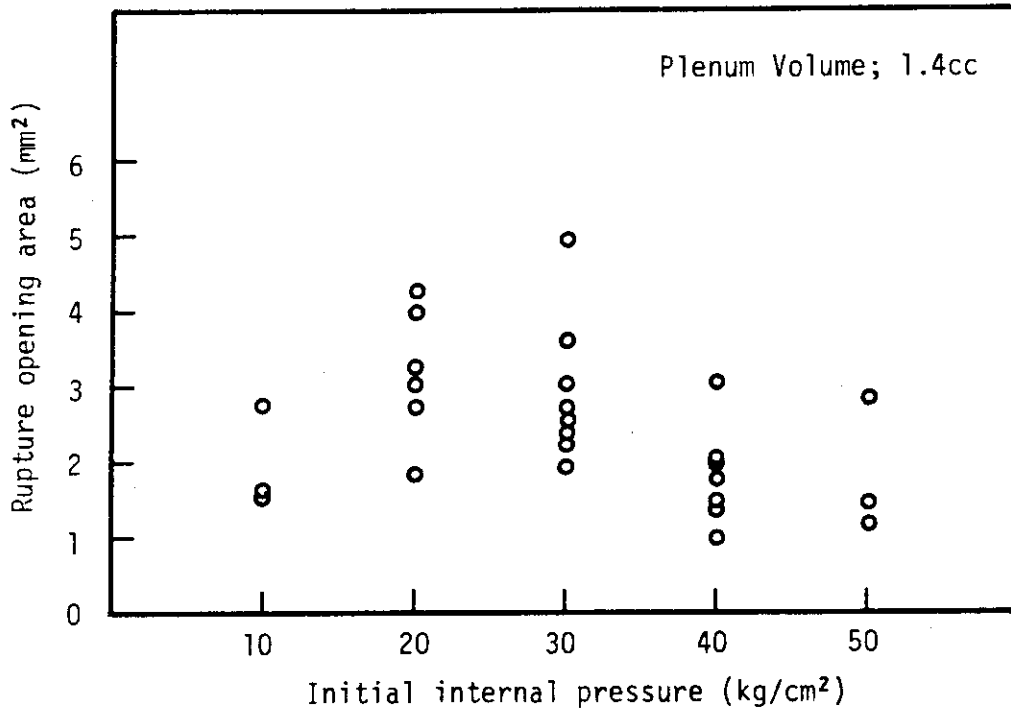


Fig.6 Rupture opening area of ruptured fuel rods as a function of initial internal pressure

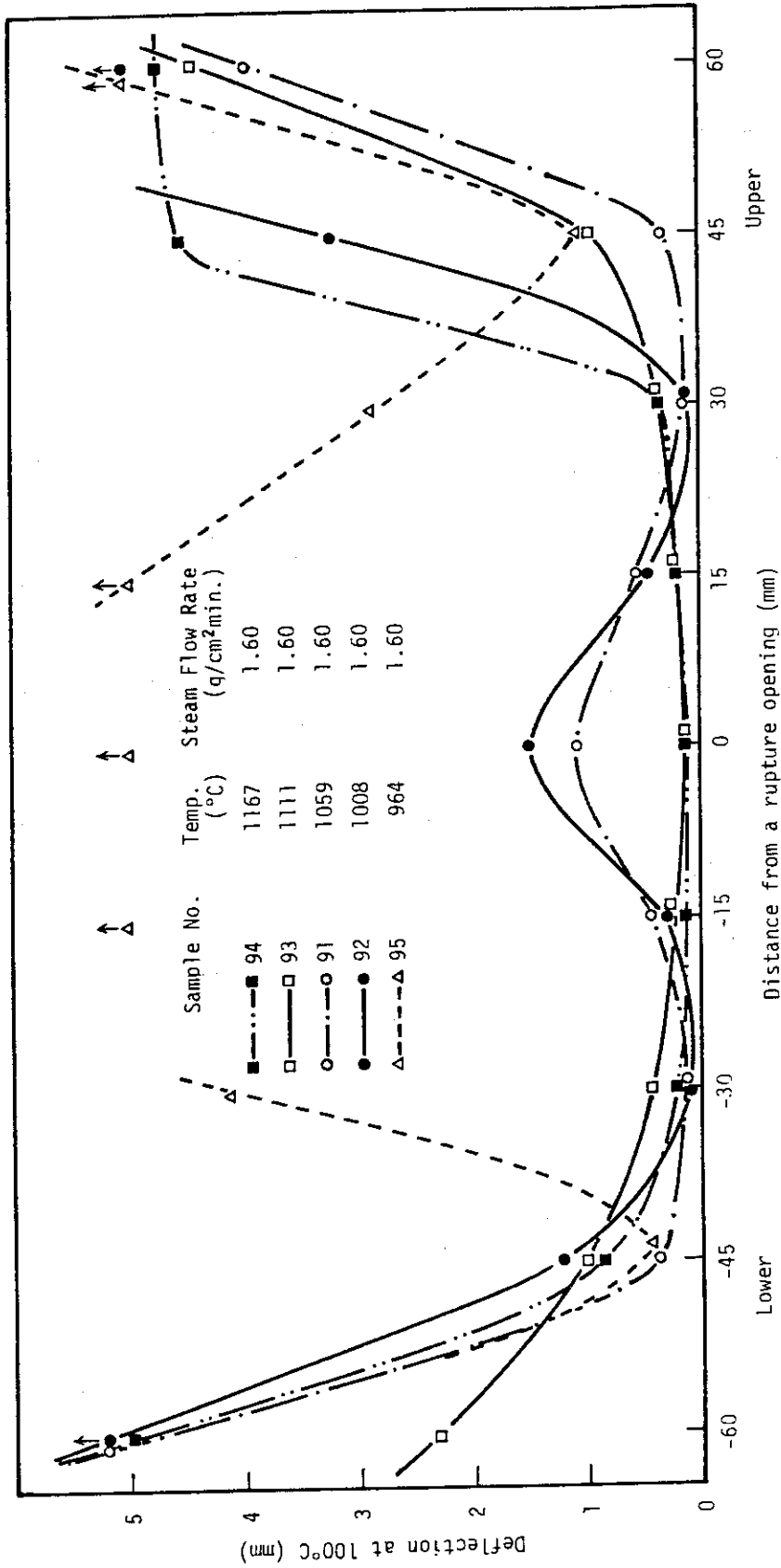


Fig.7 Ductility of fuel claddings ruptured and oxidized in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

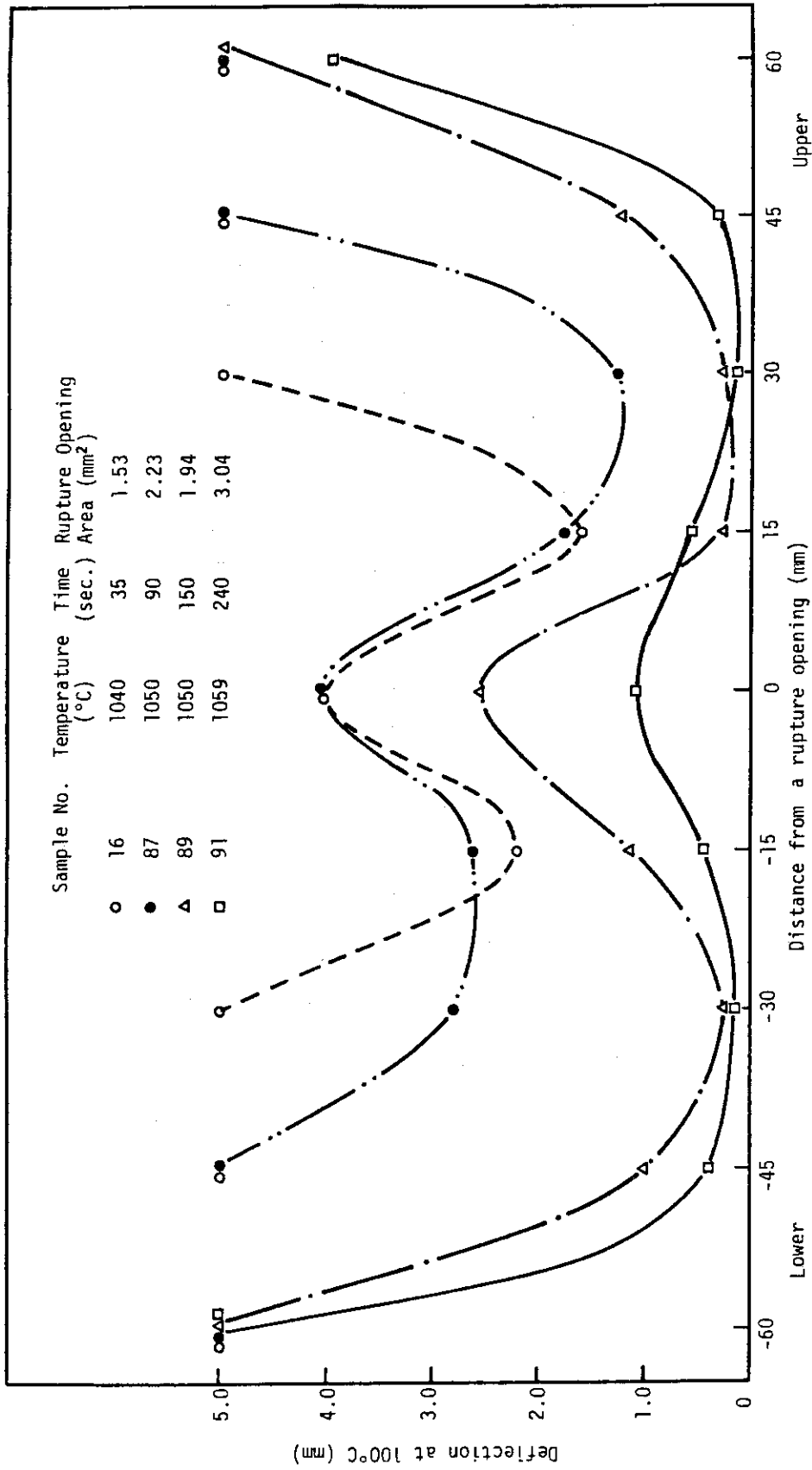


Fig.8 Ductility of fuel claddings ruptured and oxidized in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

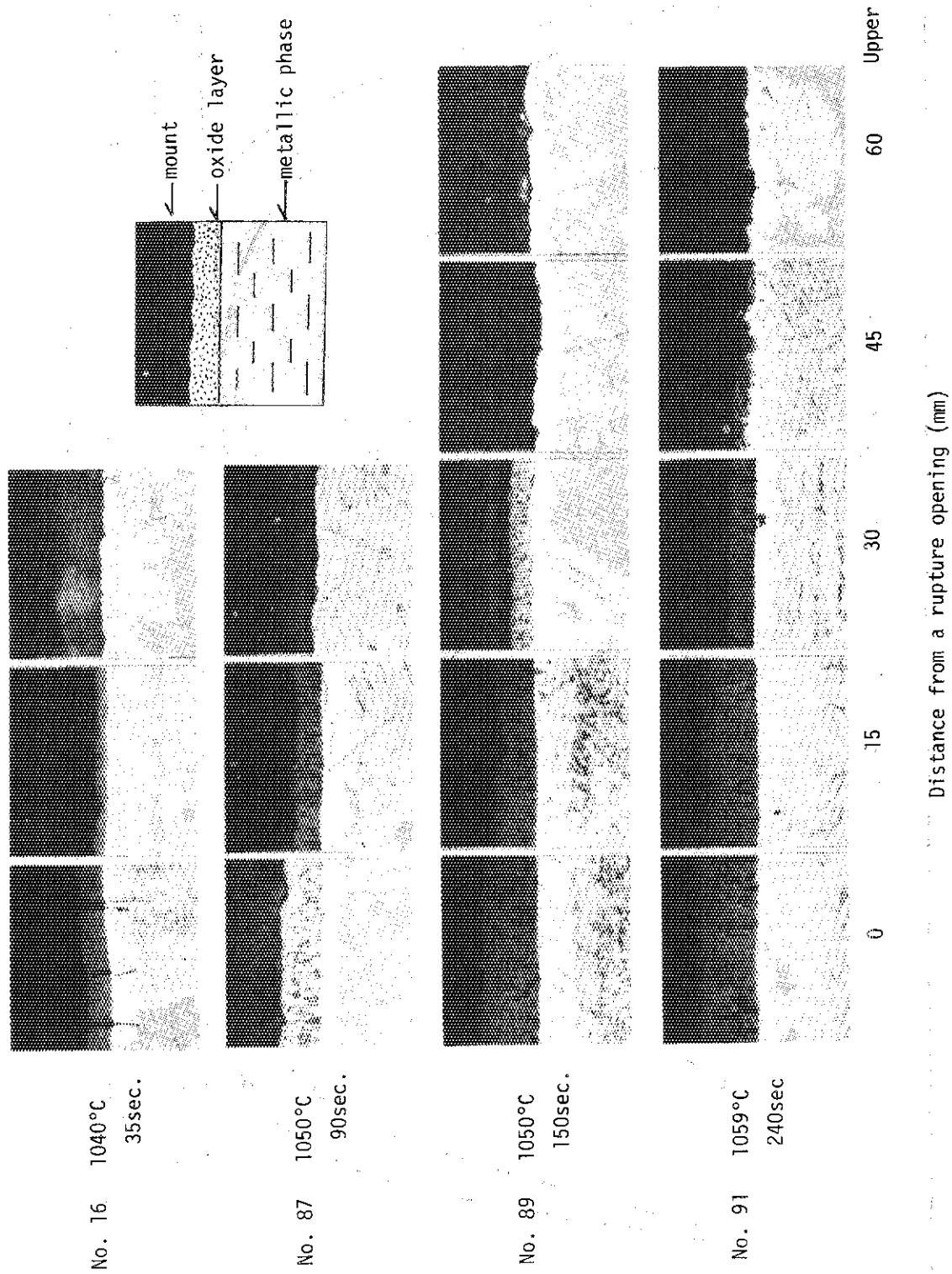


Fig.9 Opticalmicrographs of inner surface oxide layer of fuel claddings ruptured and oxidized in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min.

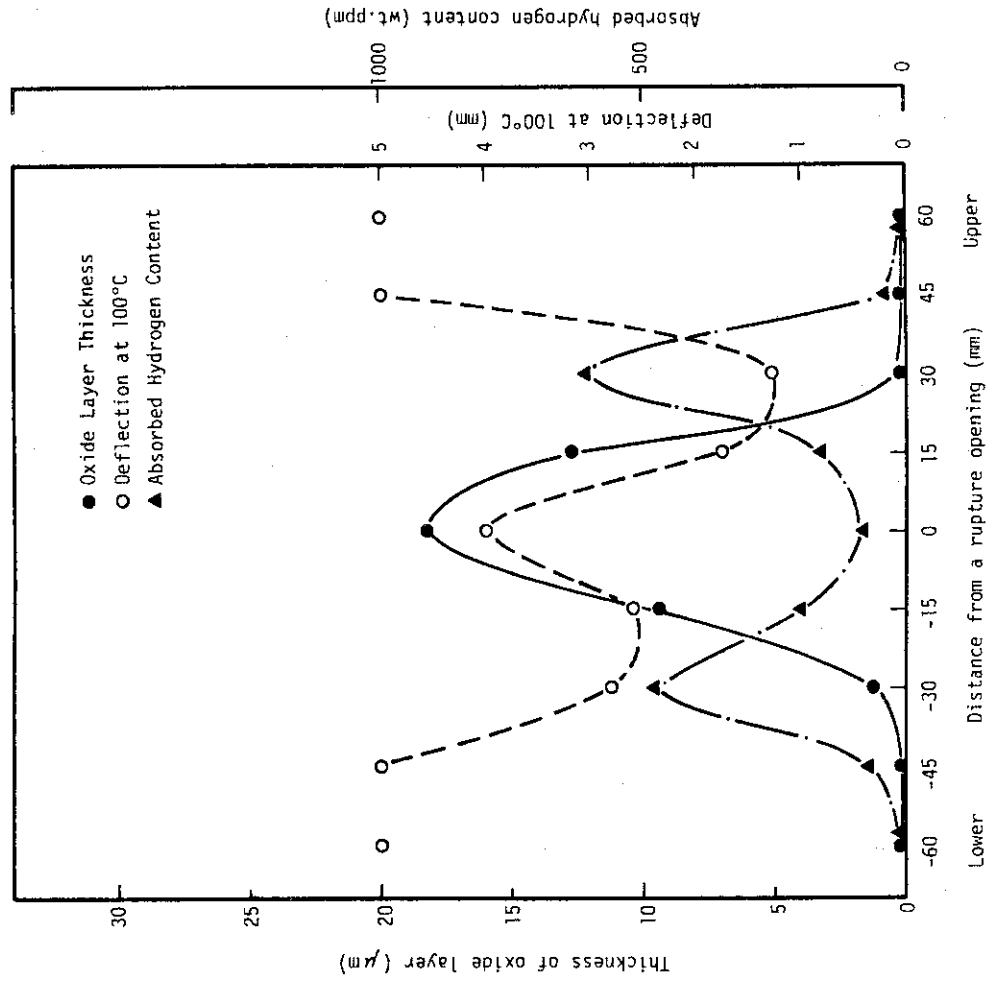


Fig.11

The variations of inner surface oxide layer thickness, ductility and absorbed hydrogen content of a fuel cladding ruptured and oxidized at 1050°C for 90 sec. in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

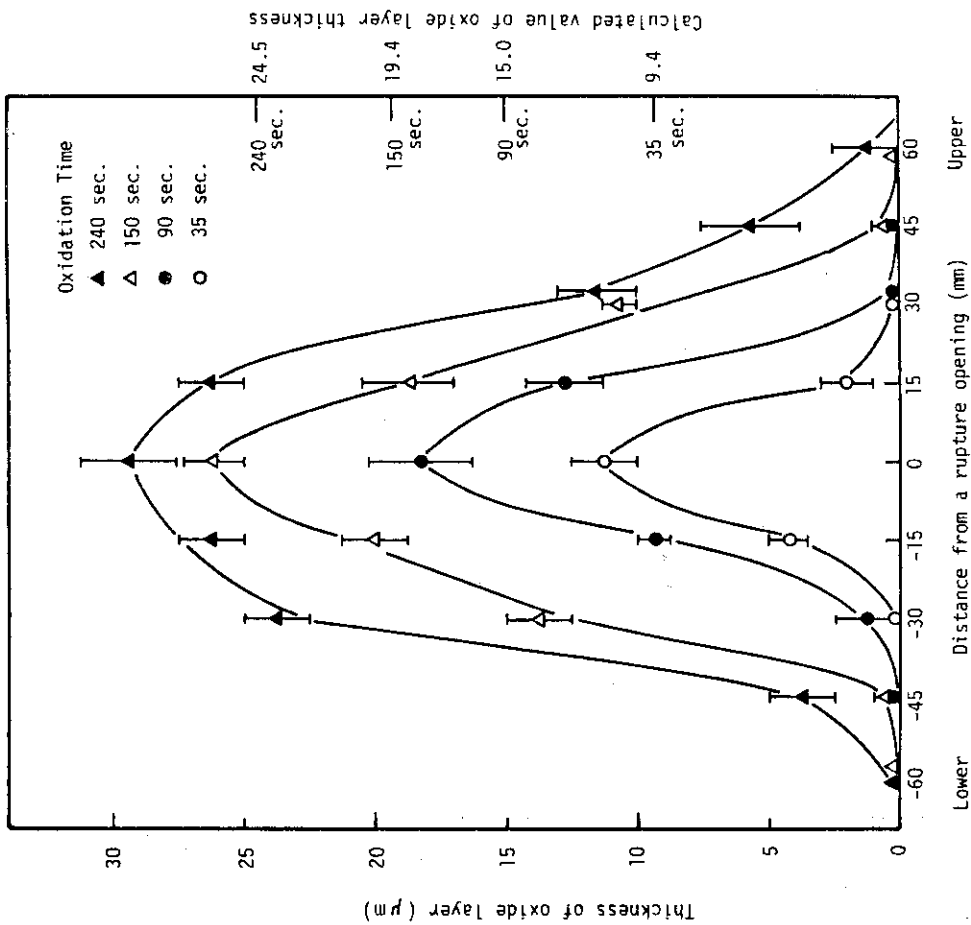


Fig.10

Inner surface oxide layer thickness of fuel claddings ruptured and oxidized in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

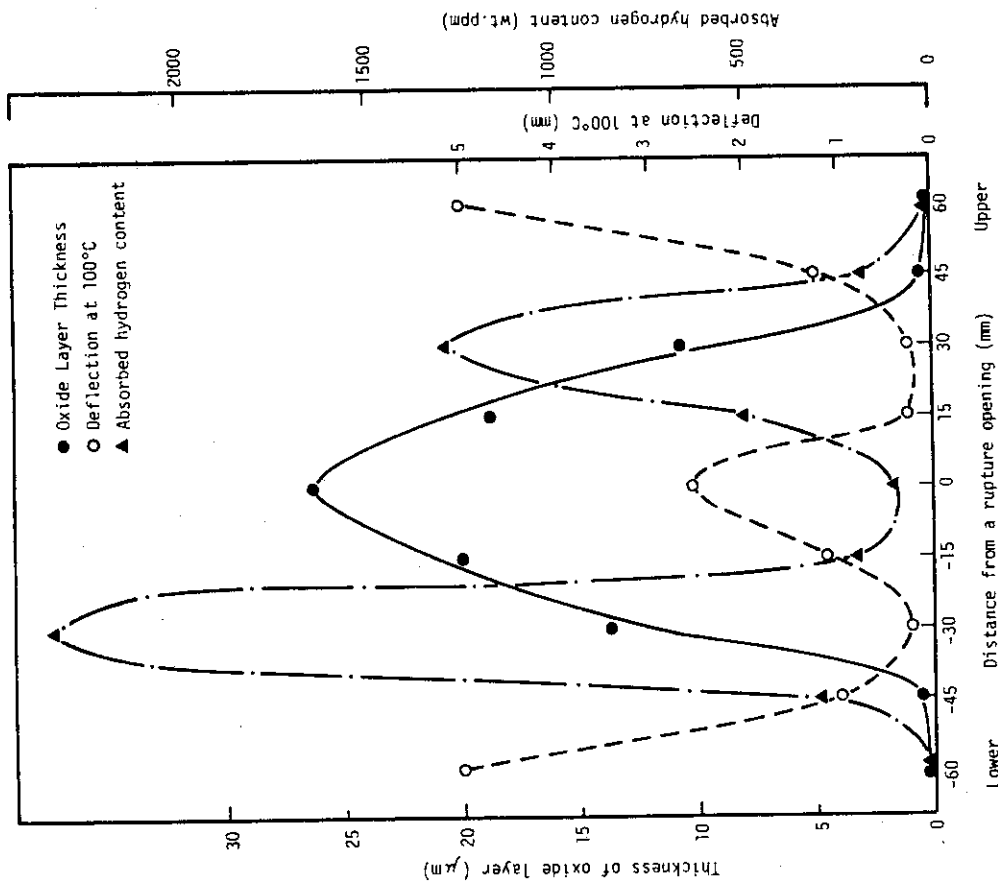


Fig.12

The variations of inner surface oxide layer thickness, ductility and absorbed hydrogen content of a fuel cladding ruptured and oxidized at 1050°C for 150 sec. in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

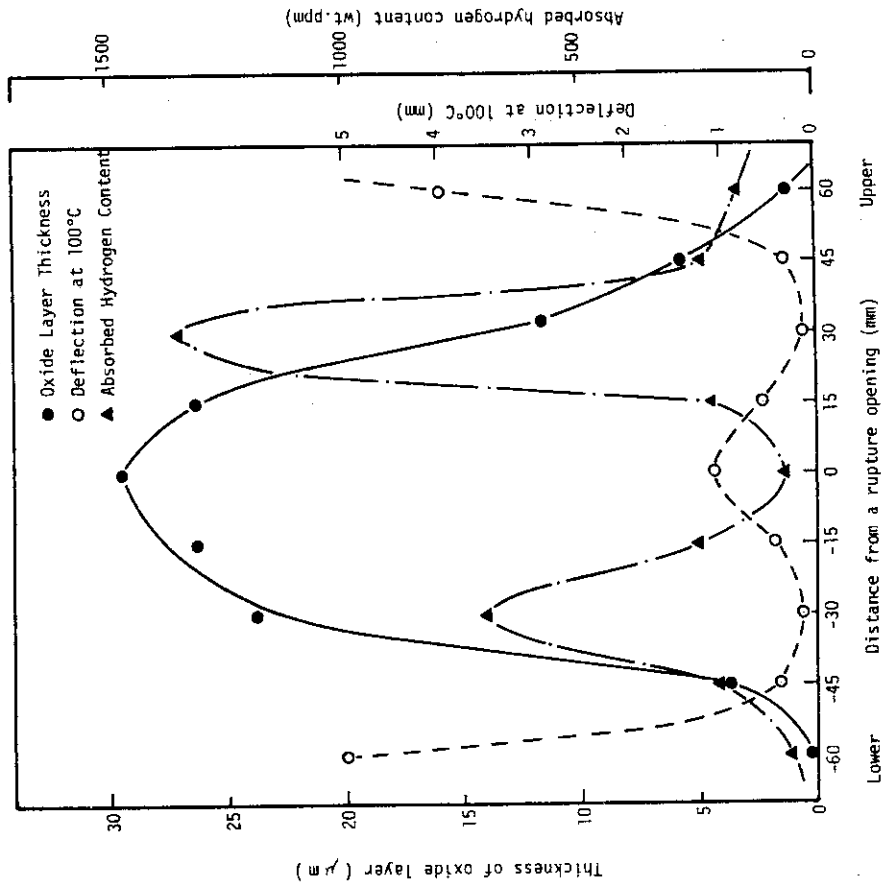


Fig.13

The variations of inner surface oxide layer thickness, ductility and absorbed hydrogen content of a fuel cladding ruptured and oxidized at 1059°C for 4 min. in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

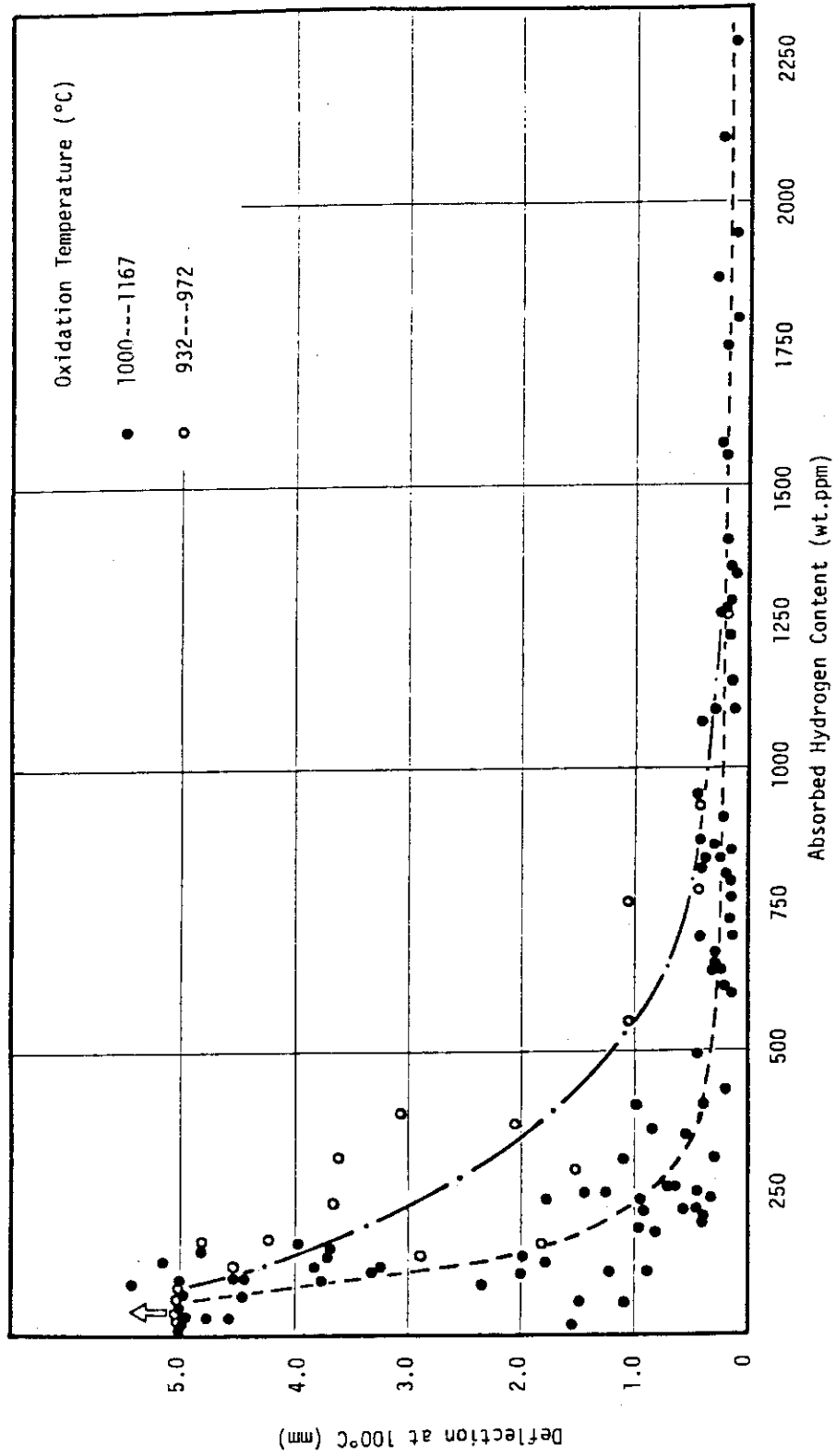


Fig.14 Ring-compression deflection at 100°C as a function of hydrogen content of oxidized zircaloy-4 cladding

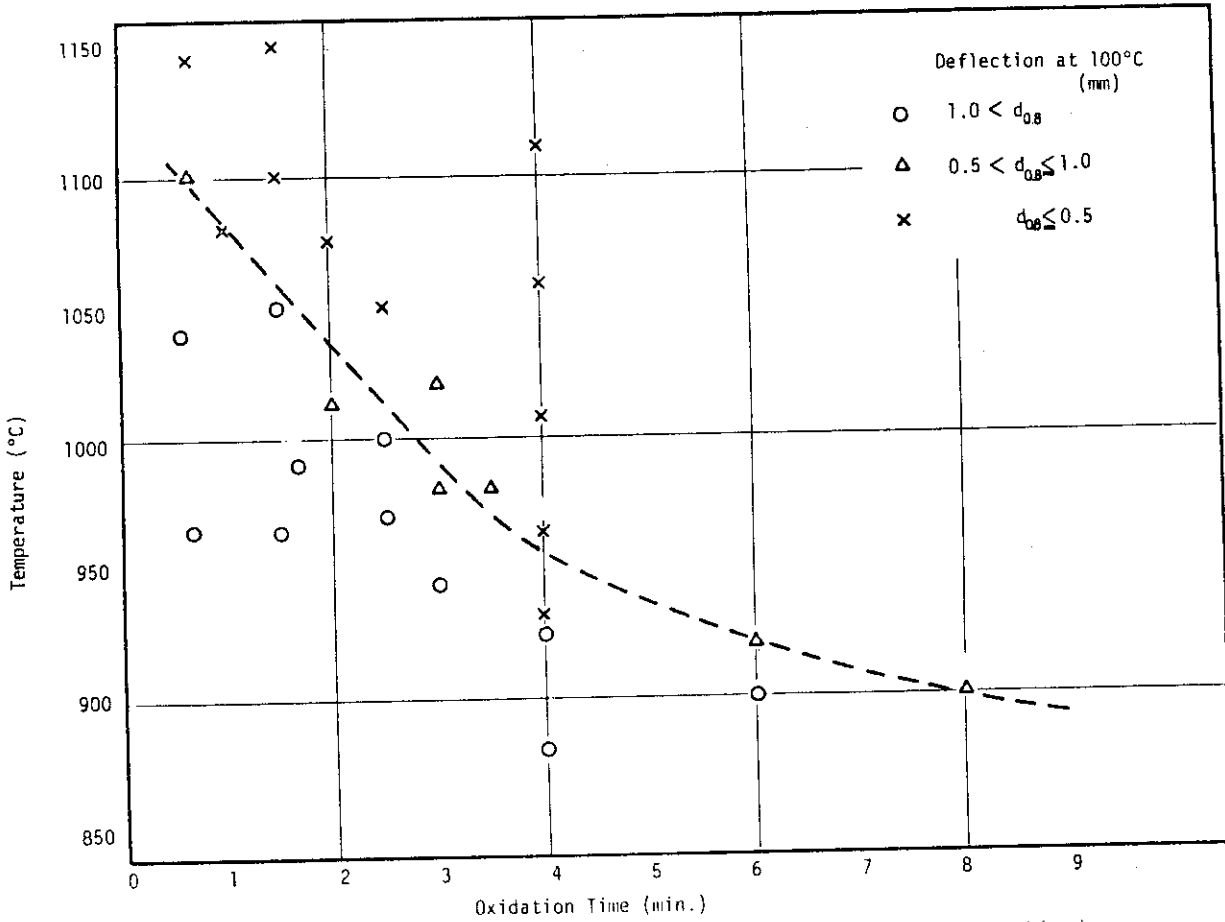


Fig.15 Embrittlement map for zircaloy-4 cladding relative to oxidation temperature and time after rupture in steam

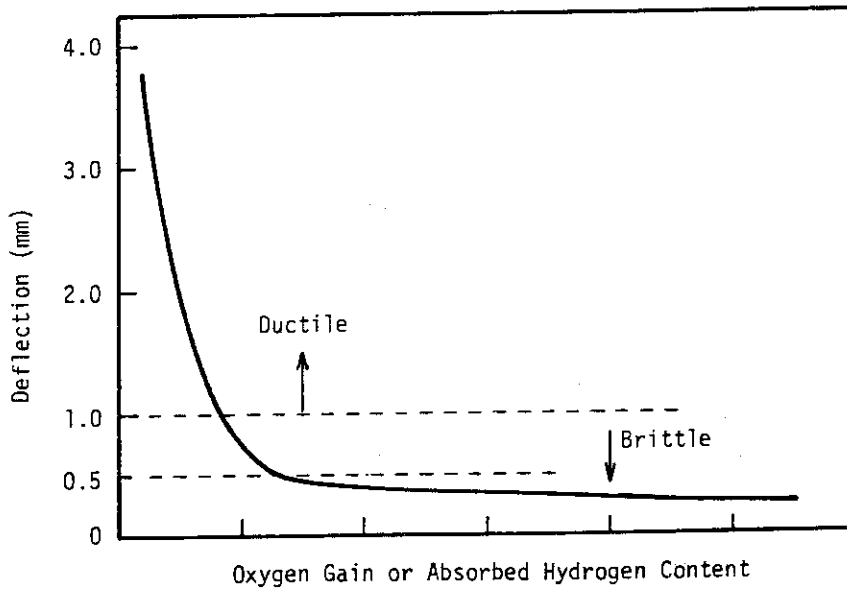


Fig.16 Schematic illustration of ring compression deflection as a function of oxygen gain or absorbed hydrogen content

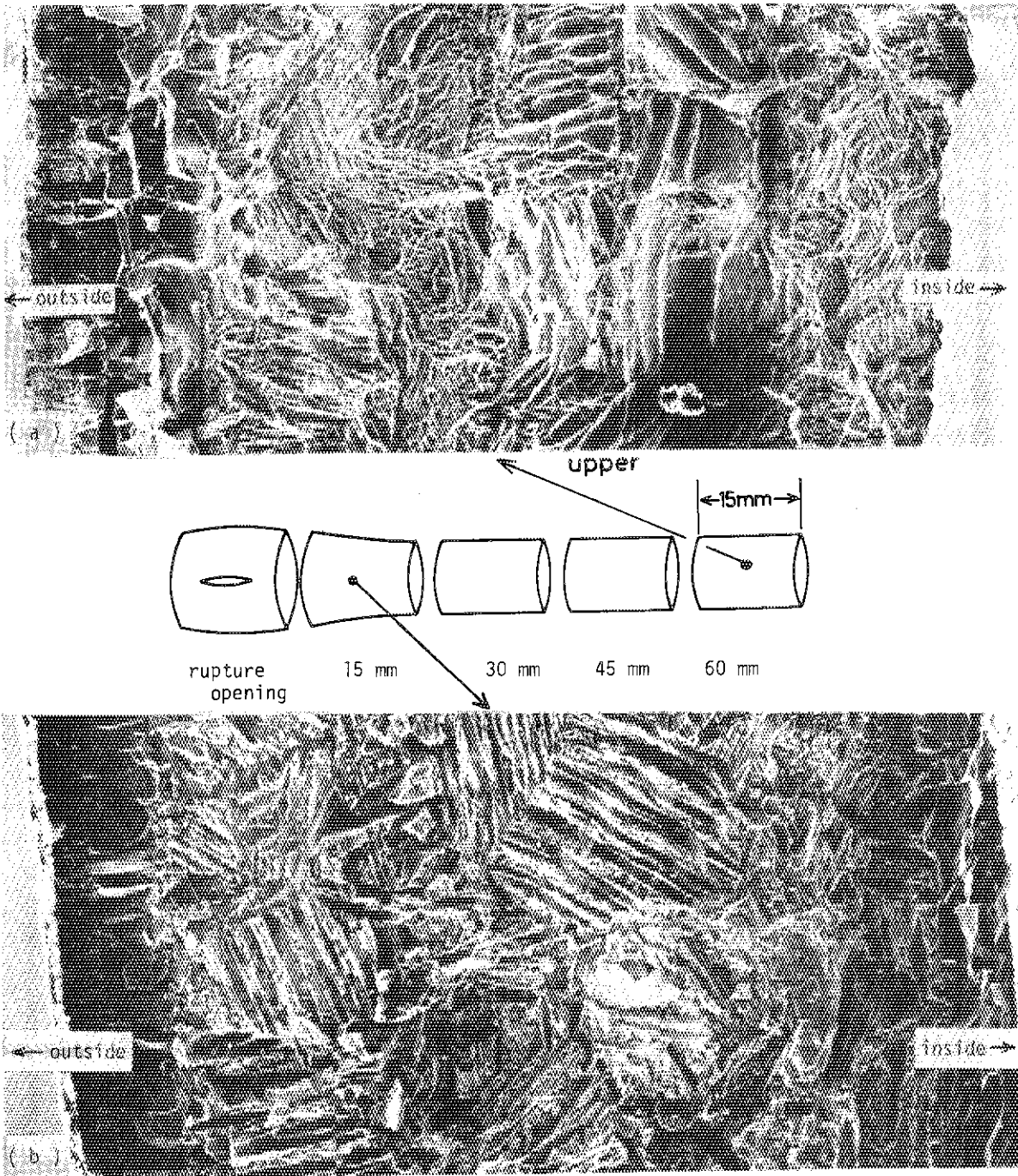


Fig.17 Scanning electron micrographs of fracture surface of Zry - 4 cladding tube oxidized at 1167 °C for 4 min. 40 μm

	(a)	(b)
hydrogen content :	30 wt.ppm	1570 wt.ppm
deflection at 100 °C:	4.7 mm	0.2 mm

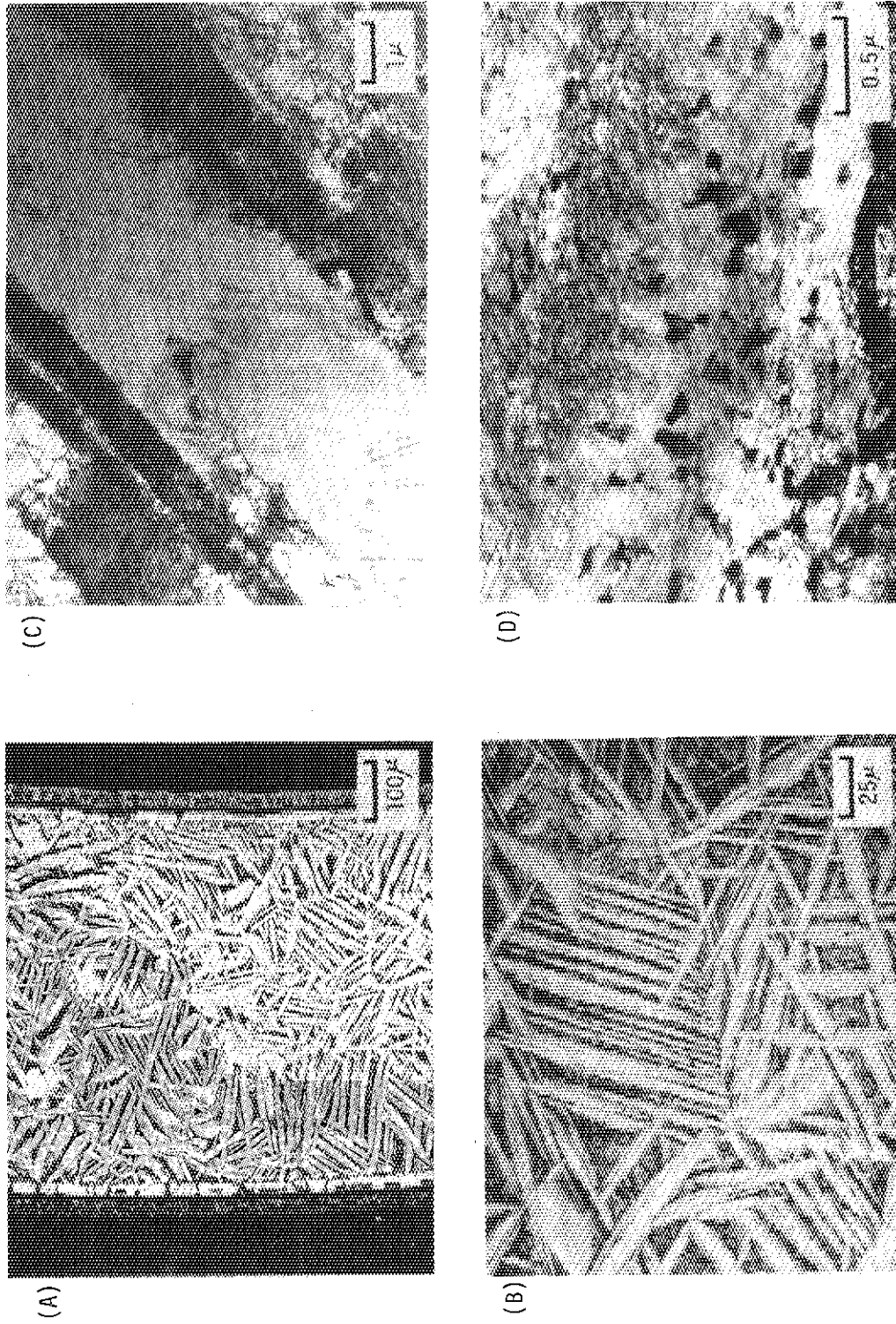


Fig.18 Optical micrographs and transmission electron micrographs of zircaloy-4 cladding ruptured and oxidized at 1059°C for 4 min. in flowing steam
(A)(B) etched structure; etchant, HF:HNO₃:glycerin = 2:1:6(in volume)
(C)(D) TEM structure

Table 4 Variations of inner surface oxide layer thickness, weight gain, generated hydrogen, absorbed hydrogen content and hydrogen absorption ratio of a cladding ruptured and oxidized in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

Rod No.89 1050°C, 150sec.		Distance from a rupture opening (mm)								
Oxide Layer Thickness (m)		-60	-45	-30	-15	0	15	30	45	60
Weight Gain (calculated) (mg/cm ²)		0	0.09	2.57	3.74	4.91	3.51	1.99	0.09	0
Generated Hydrogen (calculated;H/Zr wt.ppm)		0	23	633	921	1209	863	490	23	0
Absorbed Hydrogen Content (wt.ppm)		0	280	2310	180	80	480	1270	160	0
Absorption Ratio (absorbed/generated)			12.17	3.65	0.20	0.07	0.56	2.59	6.96	

Average Absorption Ratio; 1.14

Rod No.91 1059°C, 240sec.		Distance from a rupture opening (mm)								
Oxide Layer Thickness (m)		-60	-45	-30	-15	0	15	30	45	60
Weight Gain (calculated) (mg/cm ²)		0	0.70	4.45	4.92	5.50	4.92	2.15	1.05	0.23
Generated Hydrogen (calculated;H/Zr wt.ppm)		0	174	1101	1216	1361	1216	533	261	58
Absorbed Hydrogen Content (wt.ppm)		30	180	680	230	40	200	1330	220	140
Absorption Ratio (absorbed/generated)			1.03	0.62	0.19	0.03	0.16	2.50	0.84	2.41

Average Absorption Ratio; 0.52

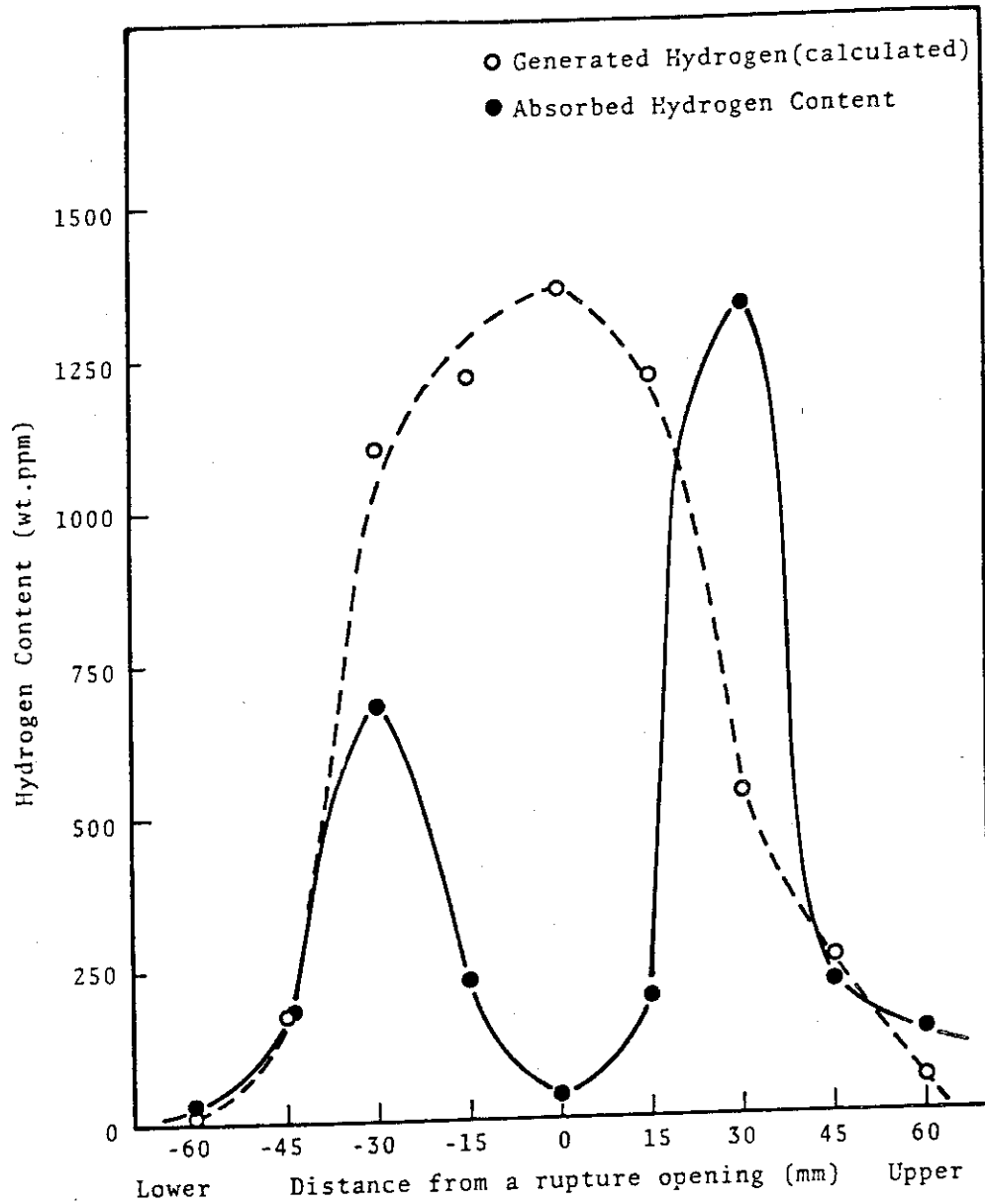


Fig.19 The variations of generated and absorbed hydrogen content of a fuel cladding ruptured and oxidized at 1059°C for 4min. in flowing steam with flow rate of 1.60g/cm²min. as a function of distance from a rupture opening

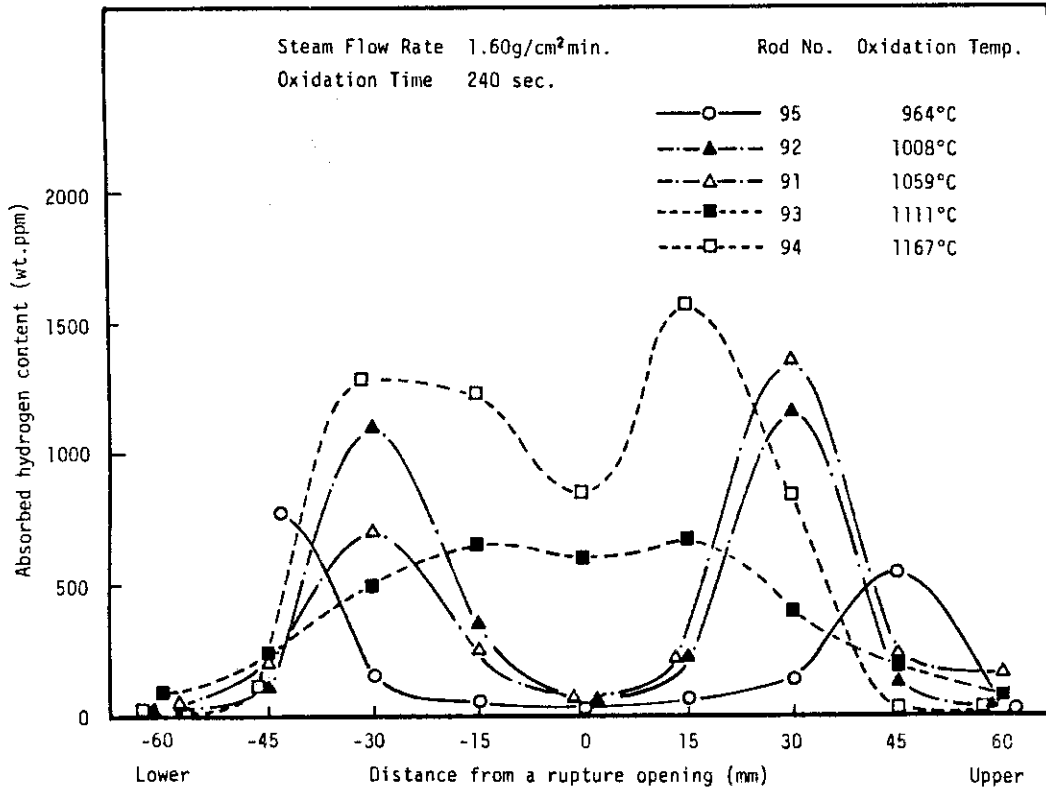


Fig.20 Hydrogen distribution in ruptured and oxidized fuel claddings as a function of distance from a rupture opening

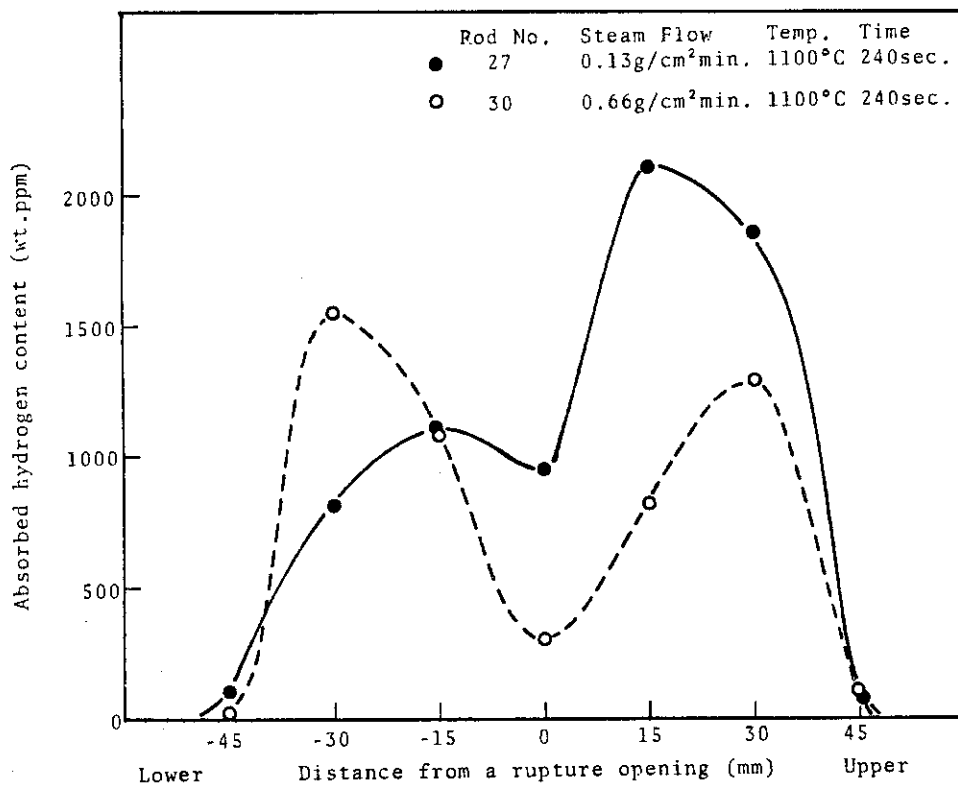


Fig.21 Hydrogen distribution in ruptured and oxidized claddings as a function of distance from a rupture opening

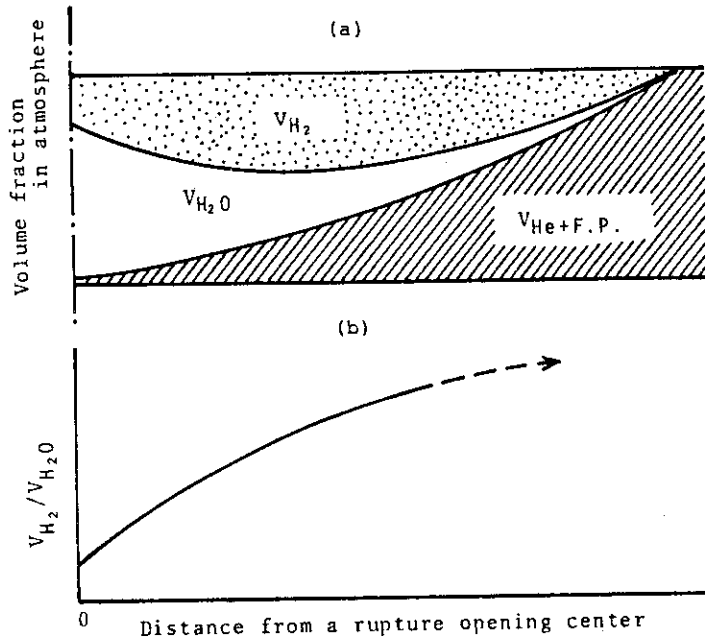


Fig.22 Schematic illustration of variations of gas volume fraction and volume ratio (V_{H_2}/V_{H_2O}) in atmosphere as a function of distance from the rupture opening center

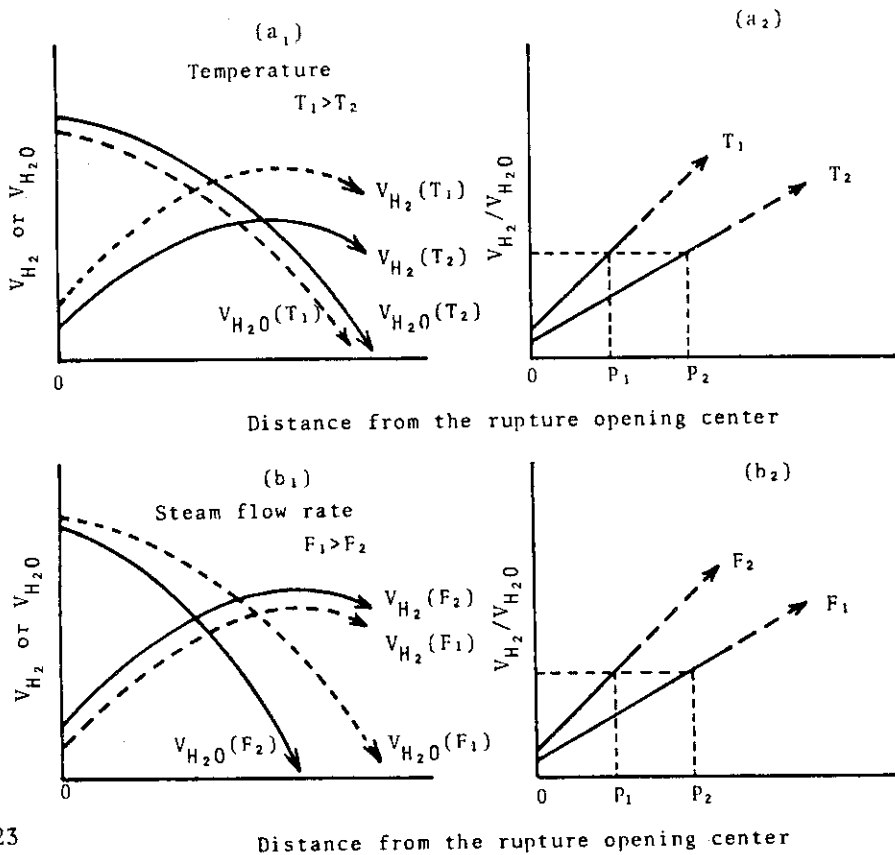


Fig.23 Schematic illustration of variations of H_2 and H_2O volume fraction (V_{H_2}, V_{H_2O}) and volume ratio (V_{H_2}/V_{H_2O}) in atmosphere as a function of distance from the rupture opening center

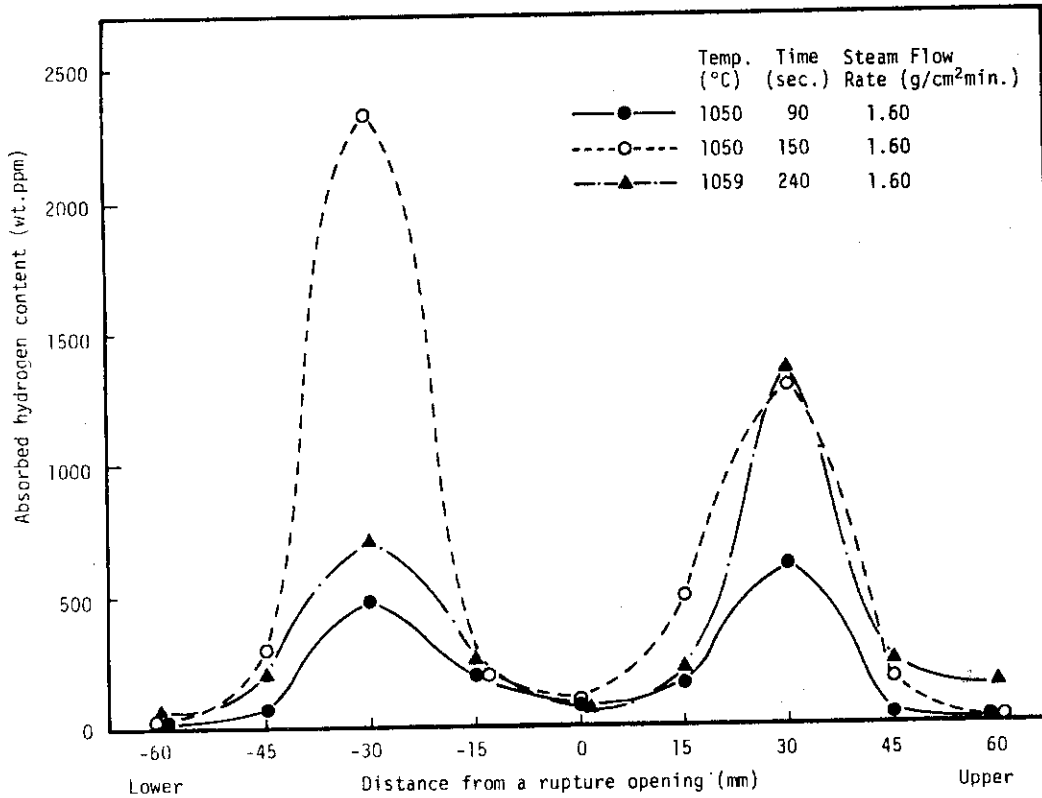


Fig.24 Hydrogen distribution in ruptured fuel claddings as a function of distance from a rupture opening

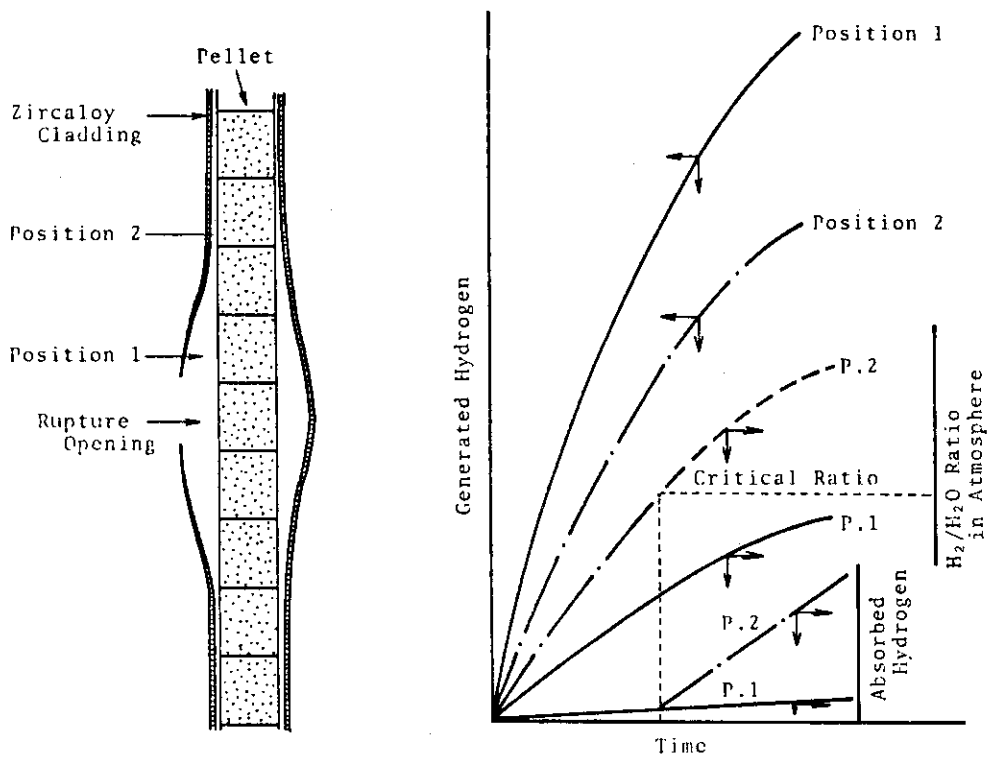


Fig.25 Schematic illustration of inner surface oxidation-hydrogen absorption behavior

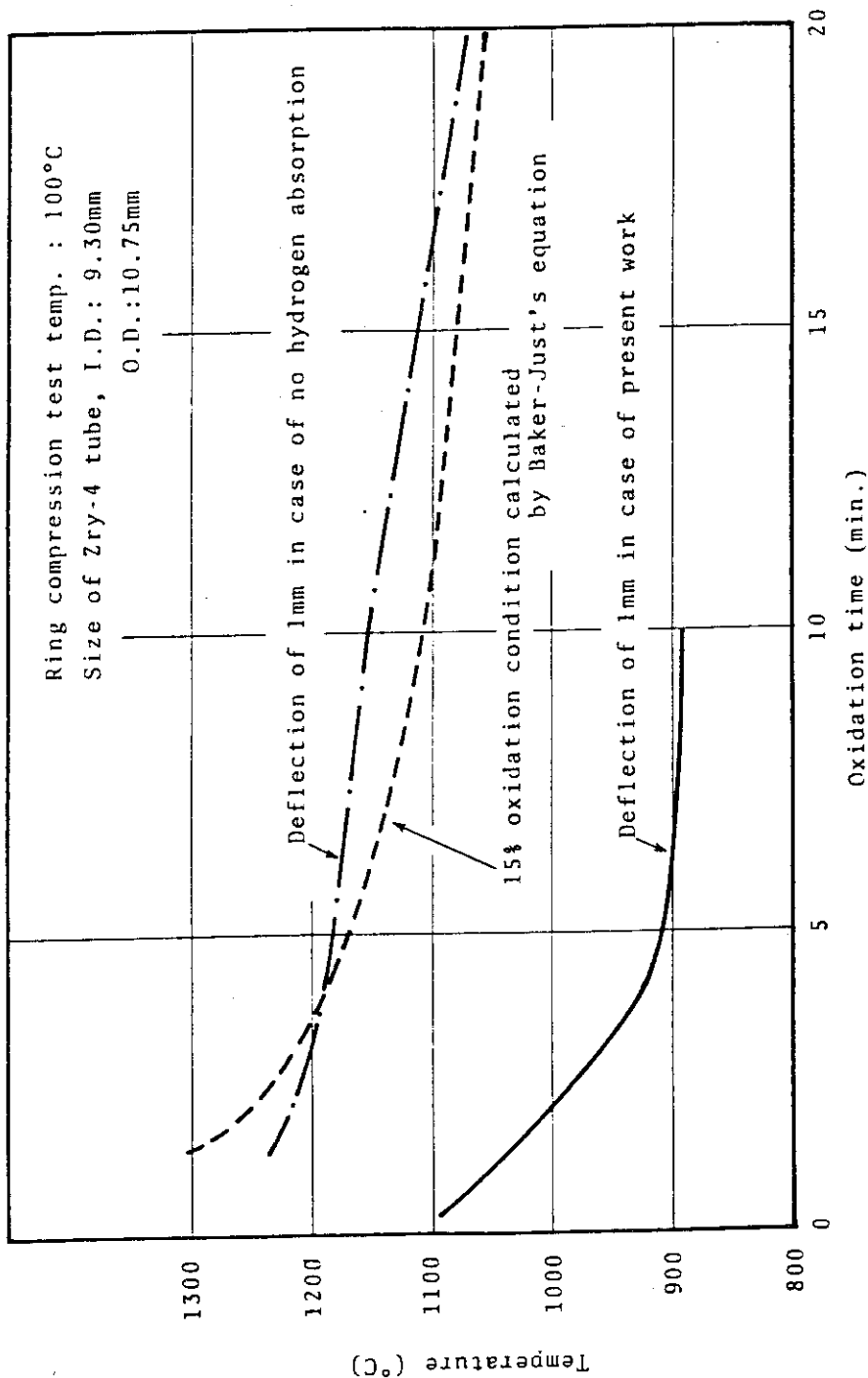


Fig.26 Ring compression ductility of specimens oxidized in flowing steam environment and 15% oxidation condition calculated by Baker-Just's equation