

JAERI-Research



JP0550492

2005-020



冷却材喪失事故時の被覆管延性低下に及ぼす  
冷却時温度履歴の影響

2005年9月

宇田川 豊・永瀬 文久・更田 豊志

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2005

編集兼発行 日本原子力研究所

冷却材喪失事故時の被覆管延性低下に及ぼす冷却時温度履歴の影響

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター原子炉安全工学部

宇田川 豊・永瀬 文久・更田 豊志

(2005年7月29日受理)

軽水炉の冷却材喪失事故 (LOCA) において、高温になった燃料棒は非常用炉心冷却系からの注水によって急冷されるが、事故シナリオによっては急冷前に燃料棒が比較的ゆっくり冷却される。高温で酸化された後、直ちに急冷される燃料被覆管と、徐冷過程を経て急冷される被覆管では、急冷を経た後のマイクロ組織が異なり、後者において延性低下がより大きいとされてきた。燃料被覆管の延性低下は、LOCA 時の原子炉の安全性に関し重要であるが、実際には冷却条件が LOCA 時の被覆管の延性低下に及ぼす影響は十分に評価されておらず、そのメカニズムは必ずしも明確ではない。

本研究では、水蒸気中、1373~1473K で等温酸化させた後、ゆっくりと冷却 (徐冷) してから急冷する試験を行った。試験条件のうち、急冷開始温度及び急冷開始前の冷却速度を変えて複数の試験を実施することにより、冷却条件の異なる急冷後試料を得た。急冷後試料を対象に室温においてリング圧縮試験を行い、急冷開始温度や急冷開始前の冷却速度といった冷却条件が、酸化した被覆管の延性低下に及ぼす影響を評価した。また、マイクロ組織の観察、硬さ試験、計算コードを用いた解析の結果などにに基づきメカニズムを考察した。

被覆管を高温で酸化させると、表面には酸化膜が生じ、その内側では酸素濃度の高い $\alpha$ 相の層が形成され、また金属層においても酸素濃度の上昇が起こる。酸化後、被覆管が等温酸化温度からゆっくりと冷却される間に、金属層では比較的酸素濃度の高い $\alpha$ 相が析出する。マイクロ組織の観察によれば、析出した $\alpha$ 相が金属層全体に占める割合は、急冷開始前の冷却速度の減少に対してはほとんど変化しない。一方、急冷開始温度が低くなると有意な増加を示す。またリング圧縮試験において、試料の急冷開始温度が低くなる程、被覆管の延性は大きく低下した。これらの結果から、被覆管の延性低下は、 $\alpha$ 相領域の面積割合に強く依存することが明らかになった。延性の低い $\alpha$ 相領域は急冷後の被覆管においてクラック伝搬の優先的な経路となり得ることから、 $\alpha$ 相領域の面積割合が増大すると肉厚方向のクラック伝搬が容易になり、その影響が被覆管全体の延性低下として表れるものと考えられる。

Effects of Temperature History during Cooling Process on Cladding Ductility Reduction  
under Lost of Coolant Accident Conditions

Yutaka UDAGAWA, Fumihisa NAGASE and Toyoshi FUKETA

Department of Reactor Safety Research  
Nuclear Safety Research Center  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 29, 2005)

In a Loss-of-Coolant Accident (LOCA) of LWRs, heated fuel rods are quenched by water injected from the Emergency Core Cooling System. Existing analyses indicate that fuel rods are cooled slowly before the quench and the cooling rate at that stage depends on scenario of the accident. Microstructure can be different between fuel claddings quenched directly from high temperatures and those quenched after slow-cooling process. It has been suggested that ductility reduction is enhanced in the latter case. Although reduction in cladding ductility is important for reactor safety in a LOCA, the effects of cooling conditions on the cladding ductility reduction has not been sufficiently investigated and mechanism for the influence of cooling rate has not been clarified.

In the present study, samples cut from non-irradiated 17x17-type Zircaloy-4 cladding tubes for PWRs were isothermally oxidized at 1373 and 1473 K, slowly cooled and then quenched, changing temperature at which quenching process is started and rate of the slow cooling. The oxidized and quenched samples were subjected to ring compression test in order to evaluate effects of the cooling conditions on the cladding ductility reduction. In addition, metallographic examination, Vickers hardness test and computer code analysis were conducted to examine the mechanisms.

Due to oxidation,  $ZrO_2$  layer is formed at the cladding surface, oxygen-stabilized alpha phase layer is formed beneath the oxide layer, and oxygen concentration increases in the central metallic layer. As the metallic layer is cooled slowly from the isothermal oxidation temperatures, oxygen-rich  $\alpha$  phase precipitates in the  $\beta$  phase layer. It was found out that reduction in cladding ductility strongly depends on area fraction of  $\alpha$  phase region precipitated in the metallic layer. Both size and hardness of  $\alpha$ -phase region are increased as the rate of the slow cooling decreases, while the area fraction is nearly constant. Accordingly, the reduction in cladding ductility is not affected by the cooling rate. On the other hand, the area fraction of  $\alpha$ -phase region becomes larger and the cladding ductility is reduced more significantly when the quench is initiated at lower temperatures. Since  $\alpha$ -phase region with lower ductility can be preferential path for crack propagation, increase in area fraction of  $\alpha$ -phase region possibly decreases resistance for wall-through cracking, which results in cladding ductility reduction.

Keywords: LOCA, Cladding, Mechanical Properties, Ring Compression Test, Oxygen Concentration, Cooling Speed

目次

1. 緒言 .....	1
2. 実験 .....	3
2.1 試料 .....	3
2.2 酸化・急冷試験 .....	3
2.3 急冷後試験 .....	4
2.4 試験マトリクス .....	5
3. 実験結果と考察 .....	7
3.1 温度履歴 .....	7
3.2 冷却条件と重量増加の関係 .....	7
3.3 ミクロ組織観察 .....	7
3.4 微小ビッカース硬さ試験 .....	10
3.5 酸素定量分析 .....	11
3.6 リング圧縮試験 .....	12
4. 結論 .....	16
謝辞 .....	17
参考文献 .....	17

## Contents

1. Introduction.....	1
2. Experimental Procedure .....	3
2.1 Material.....	3
2.2 Oxidation-Quench Test.....	3
2.3 Post-Quench Test.....	4
2.4 Test Matrix.....	5
3. Results and Discussions .....	7
3.1 Temperature History .....	7
3.2 Correlation between Weight Gain and Cooling Condition .....	7
3.3 Metallographic Examination .....	7
3.4 Vickers Hardness Test.....	10
3.5 Oxygen Analysis.....	11
3.6 Ring Compression Test .....	12
4. Conclusions.....	16
Acknowledgements .....	17
References.....	17

## 1. 緒言

軽水炉の冷却材喪失事故（LOCA：Loss-of-Coolant Accident）においては、一次系のバウンダリが破損することにより、原子炉炉心水位が低下し燃料被覆管温度が上昇する。事故発生後まもなく非常用炉心冷却系（ECCS：Emergency Core Cooling System）からの注水が開始されるが、高温になった燃料が冷却されるまでには事故発生から数分を要し、この間に燃料被覆管においては高温酸化が進行する。高温酸化により被覆管の延性は低下し、低下が著しい場合にはECCSからの注水時に受ける熱衝撃により被覆管は破断、破砕する可能性がある。広範囲に被覆管の破断、破砕が起これば多量の被覆管片や燃料ペレット片が炉心下部に堆積し、炉心の冷却能力喪失につながるおそれがある。LOCA時においても被覆管の破断、破砕を防ぎ炉心の冷却可能な形状を維持するために、ECCSの性能を規定する安全審査指針（ECCS性能評価指針<sup>1)</sup>が原子力安全委員会により定められている。

同指針においては、計算される燃料被覆管温度の最高値が1200℃以下であること、また化学量論的酸化量が酸化前の被覆管厚さの15%以下であることが定められている。化学量論的酸化量とは、被覆管に吸収された酸素が全てZrO<sub>2</sub>の形成に使われると仮定した場合の、酸化に費やされる被覆管金属厚さの割合であり、一般には同じ意味を持つ等価被覆酸化量（Equivalent Cladding Reacted：ECR）が酸化量の指標として用いられている。日本における酸化量に関する制限値は（15%ECR）は、米国における制限値（17%ECR）に比べ2%小さい。米国において指針制定時に根拠とした実験では被覆管酸化後直ちに急冷を行っているのに対し、事故シナリオによっては燃料被覆管がECCS水により急冷される前に数K/s程度の速度でゆっくり冷却されることがある。この徐冷によりマイクロ組織が変化し、被覆管の延性低下が促進される可能性が指摘されており<sup>2)</sup>、日本における指針制定時には徐冷の効果を考慮し酸化量に関する制限値を2%低下させた。その後行われたLOCA条件を模擬し急冷時の燃料被覆管破断を調べる試験などにおいては、必ず徐冷を経た後に被覆管の急冷を行っている<sup>3)</sup>。

Komatsuらは、PWR用ジルカロイ-4被覆管を対象に冷却速度に依存した被覆管機械特性の変化を調べ、室温リング圧縮試験において冷却速度が小さくなる程初期クラックが小さな荷重で生じたことを報告している<sup>2)</sup>。被覆管の強度が低下することについてKomatsuらは、冷却速度の低下に伴い、金属領域にくさび状に析出する酸素濃度の高い $\alpha$ 相（ $\alpha$ -incursion）が現れ（Fig. 1）、この $\alpha$ -incursionが肉厚を貫通するクラックのパスとなることを、その原因として挙げている。Komatsuらは、冷却速度の低下により延性低下が促進されるとしているが、同報告において示されているのは冷却速度変化に伴う被覆管の強度の変化であって、延性の変化は直接評価されていない。また冷却条件が酸化した被覆管の延性低下に及ぼす影響を調べた研究例は、他にほとんど見られない。従って、燃料のLOCA時安全性に直接結びつく被覆管の延性低下に関し、冷却速度が及ぼす影響について定量的評価や機構解明がなされているとは言えない。またジルカロイ-酸素系状態図<sup>4)</sup>から、 $\alpha$ -incursionの析出は急冷開始温度によっても変化すると考えられ、その影響についても調べる必要がある。

本研究では、LOCA時における被覆管の延性低下に及ぼす冷却過程での冷却速度と急冷開始温度の影響を明らかにすることを目的に、様々な条件で冷却した酸化被覆管の延性をリング圧縮

試験により調べた。また、機構解明のため、マイクロ組織の観察、硬さ試験、酸素分析、計算コードを用いた解析を行った。



## 2. 実験

### 2.1. 試料

内径 8.36mm、外径 9.50mm の PWR 用 17×17 タイプの低スズ・ジルカロイ-4 被覆管を、50mm 長さに切り出し、以下に示す酸化・急冷試験を行った。被覆管試料表面には、軸方向中間位置に 1 点、またこの位置から軸方向上下に 18mm の間隔をおいて 1 点ずつ、計 3 点に R タイプ熱電対をスポット溶接した (Fig. 2)。酸化・急冷後、3 箇所ある熱電対溶接点からそれぞれ軸方向長さ約 6mm のリング状試験片を切り出し、半径方向断面においてマイクロ組織を観察した。これらの試料の一部は、微小ビッカース硬さ試験、酸素定量分析にも用いた。また熱電対溶接位置の間から軸方向長さ 8mm のリング状試験片を計 2 個切り出し、リング圧縮試験に供した。3 本の熱電対の指示値から、試料長さにおいて 10K 程度の温度差があると考えられる。同一酸化条件の試料から切り出した試験片同士が、可能な限り近い温度履歴を持つよう、試料中央に 6mm の金相試験用試験片の領域を確保しつつ、リング圧縮試験用のリング状試験片は、可能な限り軸方向中間位置に近い部分から切り出しを行った。

### 2.2. 酸化・急冷試験

Fig. 3 に実験装置の概略を示す。試料の加熱には、急速加熱が可能であり試料の温度コントローラが容易な赤外線イメージ炉を用いた。使用した赤外線イメージ炉は 4 本のハロゲンランプの光を集光して試料を加熱するが、ランプに対抗する位置で比較的溫度が高くなる傾向にある。そこで、本研究においては、白金線を巻いた石英製治具の中に試料を固定し周方向温度分布を無くした。試料を治具に固定する際には白金線を用いている。試料を入れた治具を石英製反応管内中央に吊り下げ、石英製反応管の外側から赤外線イメージ炉で試料を加熱した。試料が赤外線イメージ炉の加熱中心位置 (周方向中央) に来るよう、また試料の軸方向中間位置が赤外線イメージ炉の軸方向中間位置とほぼ同じ高さに来るよう相互の位置を調整した。

試験手順を Fig. 4 に模式的に示す。試料を実験装置にセットした後、石英製反応管内に毎秒約 36mg/s の水蒸気を流した。被覆管表面温度が約 350K 前後で安定してから、等温酸化を行う酸化温度 (1373K 及び 1473K) まで、10K/s で試料を加熱した。被覆管表面に溶接した 3 本の熱電対を用いて試料の温度履歴を測定し、試料長さ中間に溶接した熱電対を用いて温度制御を行った。酸化試料温度が酸化温度に到達した時点で、赤外線イメージ炉はプログラム制御により等温過程に移り、目標とする酸化量に対応する酸化時間が経過するまでの間、指定した酸化温度を保持した (Fig. 4 左)。この間石英管への水蒸気供給を続けた。等温酸化後、水蒸気の石英製反応管への供給を停止し、試料を徐冷した。本研究では、徐冷過程での冷却速度を約 1~7K/s とした。冷却速度が 4K/s 以下のケースでは、プログラムによって温度制御を行い、一定の速度で冷却を行った。温度制御を行いながら 4K/s 以上の速い冷却を行うことは本試験装置においては不可能なので、比較的大きな冷却速度を得るために、等温酸化終了後直ちに赤外線イメージ炉を停止し冷却した。

この場合、冷却速度は制御されていないため緩い曲線を描き、平均の徐冷速度は約 7K/s であった。原子炉の炉型や ECCS の性能にもよるが、商用炉に対する安全解析で得られる急冷前の冷却速度は 5K/s 程度である。従って、本研究において設定した徐冷過程での冷却速度はこれを包絡しかつ一般的な範囲での条件設定といえる。

徐冷の過程により酸化試料温度が下降し、1073K~1373K に達した時点で、冷却水を反応管下端から注入し、酸化試料を冠水させて急冷した。

### 2.3. 急冷後試験

急冷後試料を実験装置より取り出し、ファインカッターを用いて 2.1 節に述べた通り試料を切断した。切り出した試料に対し、以下の試験を行った。

#### 2.3.1. ミクロ組織観察

3 箇所熱電対溶接位置から切り出したリング状試験片をミクロ組織観察用の試料として用いた。試料を樹脂に埋め込み、半径方向断面に対しエメリー紙を用いた機械研磨と蒸留水・硝酸・フッ酸・乳酸の混合液（体積比 19 : 19 : 7 : 55）によるエッチングを行い、光学顕微鏡により観察した。酸化条件及び冷却条件によるミクロ組織の違いを調べるとともに、金相写真の画像解析を行うことにより、酸化膜厚さ、安定化  $\alpha$  相厚さ、金属層（prior- $\beta$  相）厚さ、金属層に占める  $\alpha$ -incursion の面積率、 $\alpha$ -incursion 単位大きさ等を測定した（Fig. 1 参照）。ここで  $\alpha$ -incursion 単位大きさの定義は以下の通りである。金相写真中、Fig. 1 で 2 箇所例示したように離れて析出した  $\alpha$  相領域を、個別の  $\alpha$ -incursion として扱う。個々の  $\alpha$ -incursion について、面積を求め、この面積の平方根を取った量が、 $\alpha$ -incursion 単位大きさとなる。即ち  $\alpha$ -incursion 単位大きさは、個々の  $\alpha$ -incursion と等しい面積を持つ正方形の一辺の長さに相当する量である。

#### 2.3.2. リング圧縮試験

酸化試料軸方向中間位置に取り付けた熱電対（熱電対 2 番）の上下から切り出した軸方向長さ 8mm のリング状試験片を圧縮試験に用いた。Fig. 5 にリング圧縮試験の模式図と荷重変位曲線の例を示す。試験温度は室温、クロスヘッド速度は 2mm/min ( $3.3 \times 10^{-6}$ m/s) である。圧縮試験により得られる荷重-変位曲線から試験片の延性を評価するため、指標として、次の様に定義される量  $L_c$  及び  $L_{0.8}$  を用いた。

$L_c$  : 荷重変位曲線で、塑性変形開始後、荷重が最初に急激な減少（初期クラック）を示した時点までの塑性変形量<sup>5)</sup>。

$L_{0.8}$  : 荷重変位曲線で、荷重が最大値を経て下降を開始した後、最大値の 80% に達した時点までの塑性変形量<sup>6)</sup>。

ここで塑性変形量とは、荷重-変位曲線から読み取れる弾性限界点以降の変位量を意味しており、弾性限界点の決定は次の基準により行った。すなわち、変形開始から荷重最大値（あるいは

初期クラック点、最初に来たいずれか一方)までの荷重変位曲線について、4次多項式の近似曲線を作成し、この曲線が下に凸から上に凸になる最後の変曲点を弾性限界としている。

Fig. 5 で、荷重-変位曲線に加えて引かれた3本の直線は、荷重-変位曲線の比例限界点における傾きを持ち、それぞれ比例限界点(直線 a)、初期クラックが生じた点(直線 b)、最大荷重を経た後荷重が最大時の80%に達した点(直線 c)、を通る。a と c の x 軸方向の距離が  $L_{0.8}$ 、a と b の x 軸方向の距離が  $L_c$  である。

### 2.3.3. 微小ビッカース硬さ試験

マイクロ組織観察用に作成した樹脂埋め込み済みの試料を用いて、微小ビッカース硬さ試験を行った。荷重は 100g、負荷時間は 30s である。prior- $\beta$  相中の硬さの被覆管肉厚方向分布を測定し、酸化条件及び冷却条件による硬さの違いを調べ、また  $\alpha$ -incursion とその周辺の prior- $\beta$  相との硬さの違いも調べた。

### 2.3.4. 酸素定量分析

一部の酸化・急冷試料について、AES (オージェ電子分光分析) を用いて酸素定量分析を行った。Fig. 6 に、酸素濃度を測定した被覆管断面上の位置を模式的に示す。まず、半径方向の酸素の濃度変化を調べるために、図中 A として示すように、酸化膜に1点、安定化  $\alpha$  層に1点、金属層 (prior- $\beta$  層) に  $50 \mu\text{m}$  間隔で数点について、酸素濃度を測定した。prior- $\beta$  層では、各位置における平均的な酸素濃度を測定するために、分析範囲にほぼ同じ面積の  $\alpha$ -incursion (析出) と prior- $\beta$  相 (母相) が含まれるように測定位置を微調整した。また、B として示すように、被覆管肉厚方向中央領域で約  $100 \mu\text{m}$  四方の矩形内の平均酸素濃度を測定した。さらに、C として示すように、金属層中で  $\alpha$ -incursion (析出) と prior- $\beta$  相 (母相) とのそれぞれ1点について、局所的な酸素濃度を測定した。

### 2.4. 試験マトリクス

Table 1 に酸化・急冷試験のマトリクスを示す。Komatsu らの報告<sup>2)</sup>においては、急冷前に徐冷を経験することで被覆管の延性低下が促進されるのは、prior- $\beta$  相の結晶粒界近傍で生じる  $\alpha$ -incursion 析出が影響するためであるとされている。そこで本研究においては、冷却条件によるマイクロ組織の変化と、被覆管の延性変化との間に、重要な相関がある可能性を念頭におき以下のように試験マトリクスを組んだ。

Test1-1~1-4 においては、徐冷過程の冷却速度を一定とし、急冷過程の開始温度を変化させた。これらの試験では 1373K で 415s 間等温酸化した試料について、急冷開始温度と被覆管の延性低下の関係を調べるとともに、冷却中 1373K~1073K のどの温度区間で金属層中における  $\alpha$  相析出の進行が最も著しいかを調べ、Test1-5 以降の冷却速度の効果を調べる試験における条件設定の参考とした。

Test1-1~1-4 で得られた試料のマイクロ組織を観察した結果に基づき急冷開始温度を 1173K に定め、Test1-5~1-8 では 1373K で 415s 間の等温酸化後、徐冷過程の冷却速度を変えその影響を調べた。急冷開始温度を 1173K としたのは、1273K~1173K 区間での冷却速度がマイクロ組織に大きく影響するなどの理由による。詳細については 3.3.1 において述べる。

Test2-1~2-12 において、酸化温度を 1473K として、同様に冷却速度の影響を調べた。酸化温度が 1473K のケースで等温酸化時間が順次下がっているのは、これらのケースの内始めに実施した酸化時間 134s、72s のケースでは酸化が著しく急冷後の酸化試料は殆ど脆性破断に近い破断の様相を示したため、より残存する延性の大きい領域での比較を期したものである。

Test1-1~1-8 の酸化温度 1373K、及び Test2-1~2-12 の酸化温度 1473K に対して、それぞれの酸化時間 415s と 134s は、いずれも ECR 計算値にして 15% に相当する。ECR の計算値とは、等温酸化時間 (Fig. 4, "Oxidation Time") においてのみ酸化が起こり、高温での等温酸化が次の放物線則に従うと仮定して求めたものである。

$$R^2 = Kt \quad (1)$$

式中の各文字式の意味は以下の通りである。

- ・  $R$  : 反応量
- ・  $K$  : 反応速度定数
- ・  $t$  : 酸化時間

但し反応速度定数  $K$  は、Baker-Just の式に各ケースの酸化温度及び酸化時間を適用することにより計算した。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1. 温度履歴

Fig. 7～Fig. 9 に、急冷開始温度を変えて行った実験 (Test1-1～1-4)、急冷前の徐冷速度を変えた実験 (1-5～1-8)、酸化時間を変えた実験 (2-1～2-12) における熱電対 2 番 (Fig. 2) の温度履歴をそれぞれ示す。Fig. 8 については、冷却開始までの温度履歴は全て Fig. 7 に示した Test1-2 と同様であるので、ケース間で履歴の異なる温度・時間範囲についてのみ示している。既に述べたように、Fig. 8 に示す Test1-7 では、冷却速度を比較的大きく取るため、冷却開始と共に赤外イメージ炉を停止し冷却した。温度のコントロールはなされていないために、冷却開始直後は比較的冷却速度が大きい、徐々に小さくなる。Table 1 に示した冷却速度は、100K 毎に区間平均したものである。

#### 3.2. 冷却条件と重量増加の関係

Fig. 10 に等温酸化時間の平方根と表面積当たりの重量増の関係を示す。徐冷過程の冷却速度が大きく (7 K/s) 冷却時間が短い試料では、等温酸化時間の平方根と重量増がほぼ比例関係にあることから、等温酸化時間に対する重量増加が放物線則に従っていることがわかる。一方比較的冷却速度の小さい (2 K/s) 試料で比例関係は成立せず、冷却速度の大きい試料に比べ、同じ等温酸化時間でも重量増が大きい。これは、徐冷中にも試料の酸化が進行しており、冷却速度の小さい試料では急冷までの時間が長く、その間の酸化量が比較的大きいためである。また、徐冷中に起こる酸化の寄与は、等温酸化時間の短い (酸化量の小さい) 試料でより大きい。

#### 3.3. ミクロ組織観察

##### 3.3.1. 急冷開始温度によるミクロ組織の変化

Fig. 11 に、1373K、415s 間の等温酸化後に、1073K～1373K で急冷を行った試料 (Test1-1～1-4) の径方向ミクロ断面写真を示す。1373K から急冷を行った Test1-4 では、prior- $\beta$  相領域に析出している  $\alpha$ -incursion の量は非常に少ないことが分かる。1273K から急冷を行った Test1-3 では、Test1-4 に比べ若干の  $\alpha$ -incursion 面積の増加が見られるが、依然大部分を prior- $\beta$  相が占めている。しかし、1173K から急冷を行った Test1-2 では、 $\alpha$ -incursion が prior- $\beta$  相領域中の半分程度の面積を占めている。さらに、1073K から急冷を行った Test1-1 では、 $\alpha$ -incursion が金属層中に占める面積が極端に増大し、金属層は密集した  $\alpha$ -incursion によりほぼ占められている。Fig. 12 に、断面写真に対する画像解析により求めた、急冷開始温度に依存した被覆管金属層中  $\alpha$ -incursion 面積率の変化を示す。画像解析に供する写真の選定及び画像解析における二値化作業の過程で誤差が生ずる可能性がある。二値化作業を行う上で生じる誤差範囲を、各急冷開始

温度における面積率の幅で示した。誤差を考慮に入れても、急冷開始温度の低下に伴う  $\alpha$ -incursion 面積率の増加は明確である。

Fig. 13 に解析コード PRECIP II<sup>7)</sup>を用いて行った、Test1-2 と Test1-4 に関する酸素濃度分布解析の結果を、また Fig. 14 に Chung らが作成したジルカロイ-酸素擬二元系平衡状態図を示す<sup>4)</sup>。PRECIP II は、冷却材喪失事故時におけるジルカロイ被覆管の水蒸気による酸化反応を計算するために開発されたコードである。このコードは、Chung らのジルカロイ-酸素擬二元系平衡状態図を相の境界条件として用い、被覆管中の肉厚方向の酸素拡散に関して拡散方程式を解き、各層間の境界位置及び層厚さ、酸素濃度などを計算することができる。PRECIP II を用いた解析の結果から、Test1-1~1-4 で酸化した被覆管の金属層領域における酸素濃度は、約 0.5wt%前後である (Fig. 13)。ジルカロイ-酸素擬二元系状態図 (Fig. 14) から 0.5wt%の酸素濃度を有するジルカロイは、約 1400K 以上で  $\beta$  相構造を、約 1050K 以下で  $\alpha$  相構造を持ち、その中間温度域で ( $\alpha + \beta$ ) 相構造を持つことを示している。つまり、 $\beta$  相温度域からゆっくり冷却されると、約 1400K 以下で周辺より高い酸素濃度を持つ  $\alpha$  相と酸素濃度の低下した  $\beta$  相に分かれ、徐々に  $\alpha$  相の割合が高まりながら、約 1050K ですべての  $\beta$  相が  $\alpha$  相に変態する。急冷された場合には、急冷中に酸素が拡散する時間がないまま  $\beta$  相が  $\alpha$  相に変態するため、急冷前の状態から更に  $\alpha$  相が析出・成長することではなく、 $\alpha$ -incursion の形態は急冷直前の  $\alpha$  相の状態を反映したものになる。従って、状態図からは、より高い温度から急冷された場合程、 $\alpha$ -incursion の成長は少ないと予想され、これは本研究で得られた急冷開始温度に依存した  $\alpha$ -incursion の面積割合に関する知見と定性的に一致する。また Fig. 13 は、急冷開始温度が低下することにより金属層中央領域の酸素濃度が大きくなることを示しており、急冷開始までの時間が長くなったことで酸素の金属層中央への拡散が進み、比較的酸素濃度の低い金属層中央領域においても、 $\alpha$  相が析出し易い状態になったことを示唆するものである。

以上の結果から、 $\alpha$ -incursion が金属層中に占める割合は 1273K 以下で急速に増大すること、また冷却速度を 2 K/s とした場合、1073K までにはマイクロ組織の変化がほぼ終了していることがわかる。すなわち、1273K 以上の温度から急冷した場合には  $\alpha$ -incursion が占める割合は非常に小さく、また 1073K 近傍から急冷した場合には冷却速度に関わらず  $\alpha$ -incursion の成長が最終的な段階まで進行する可能性があり、冷却速度による影響は比較的小さいと考えられる。そこで、冷却速度をパラメータとした場合に  $\alpha$ -incursion の析出に大きな変化が見られると期待できることから、以降の試験 (Test1-5~) における急冷開始温度を 1173K と定めた。

### 3.3.2. 冷却速度によるマイクロ組織の変化

Fig. 15 に、1373K で 415s 間等温酸化を行った後、約 1~7 K/s で徐冷し、1173K で急冷を開始した Test1-5~1-8 の径方向断面マイクロ写真を示す。Test1-8 では、冷却開始後 1273K で一分間等温保持しているため、冷却開始から急冷開始までを平均した冷却速度は約 1 K/s と最も小さく、 $\alpha$ -incursion の単位大きさは他の 3 ケースに比して最も大きい。Test1-8 から、Test1-5 及び Test1-6、Test1-7 と冷却速度が大きくなるにつれて、大きい  $\alpha$ -incursion は見られなくなり、逆に針状の細かい  $\alpha$ -incursion の割合が増加する。3.5 に述べるように、 $\alpha$ -incursion においては

周囲の prior- $\beta$  相に比べ酸素濃度が高く、 $\alpha$ -incursion の単位大きさが増加するには、酸素の  $\alpha$ -incursion 側への移動（拡散）が必要となる。冷却速度の小さいケースほど単位大きさの大きい  $\alpha$ -incursion が見られるのは、急冷までの時間が長くなったことで、酸素の拡散が進んだことによるものと思われる。

Fig. 16 に、断面マイクロ写真の画像解析により求めた  $\alpha$ -incursion 単位大きさの度数分布を、遅い冷却 (Test1-8, 1 K/s) と速い冷却 (Test1-7, 7 K/s) について比較した。遅い冷却を行った Test1-8 では、速い冷却を行った Test1-7 に比べ、単位大きさの大きい  $\alpha$ -incursion が全体に占める割合が大きいことがわかる。Fig. 17 に、同様に画像解析により求めた金属層中に占める  $\alpha$ -incursion 面積率の冷却速度による変化を示す。冷却速度の変化は面積率に影響を及ぼさないことが分かる。急冷までの徐冷の時間が増大している点で、Test1-5~1-8 は急冷開始温度を変化させた Test1-1~1-4 と共通であるが、Test1-1~1-4 (Fig. 12) と異なり Test1-5~1-8 では、 $\alpha$ -incursion の面積に変化が表れていない。このことから、急冷開始温度の減少に伴う  $\alpha$ -incursion 面積増加には、冷却時間の長さではなく、急冷直前の温度の違いが影響を与えたものと考えられる。

Fig. 18~Fig. 23 に、1473K で等温酸化し、冷却速度 2 K/s 及び 7 K/s で徐冷した後に 1173K での急冷を行った Test2-1~2-12 の断面マイクロ写真を示す。等温酸化時間は 134~5s であり、Fig. 18 から酸化時間が長い順に示している。冷却速度の影響が酸化量にも関連していることから、各写真の左上部分に実測した ECR を記した。実測した ECR とは、酸化試験を経た試料の重量増加を測定し、測定値を次の式に代入して得られる量である。

$$\text{実測 ECR} = \frac{\Delta w}{\rho \Delta r} \frac{M_{Zr}}{M_O} \times 100 \quad (2)$$

式中の各文字式の意味は以下の通りである。

- $\Delta w$  : 酸化を経た試料の表面積当たりの重量増加 (測定値)
- $\rho$  : ジルコニウムの密度
- $\Delta r$  : 被覆管の肉厚
- $M_{Zr}$ 、 $M_O$  : ジルコニウム、酸素の原子量

式 (2) は、ジルカロイの組成をジルコニウムのみと仮定し、また酸化により吸収された酸素が全て  $ZrO_2$  の形成に使われたと仮定し、酸化前のジルコニウムの内どれだけの割合が酸素と結合したかを、%単位で与える。ここで酸化量の指標として、等温酸化時間や、酸化時間及び酸化温度より計算した ECR (2.4) を用いるのではなく、実測 ECR を用いたのは、次の理由による。すなわち、等温酸化温度が 1473K と高い試料では、3.2 に述べたように、冷却中の酸素吸収の寄与が無視できないからである。最も顕著な例として、Fig. 23 の Test2-11 (2K/s) と Test2-12 (7K/s) を比較すると、両者は同じ等温酸化時間と等温酸化温度であるにもかかわらず、実測 ECR はそれぞれ 7.8% と 4.8% であり、遅い冷却を行った Test2-11 で約 6 割も多い酸素吸収があったことがわかる。このように等温酸化時間や、酸化時間と酸化温度から計算した ECR では、吸収酸素量を正しく反映できないので、実測値 (重量増加) に基づいた ECR を指標に用いたもので

ある。

断面マイクロ写真の比較から、冷却速度の小さいケースで $\alpha$ -incursion 単位大きさが増加する点で、上に示した酸化温度 1373K の試料に関する結果と同様の傾向が表れていることがわかる。ただし、試料の実測 ECR が 7~8% を下回ってくると (Fig. 21~Fig. 23)、 $\alpha$ -incursion と prior- $\beta$  相の境界は不鮮明となり、比較的酸化量の高い試料で見られたような、マイクロ組織外観の明瞭な変化は認められなかった。これは、酸素吸収量が小さくなったことで金属層中に拡散する酸素の量も減少し、金属層中の酸素濃度が全体的に低くなったことによるものと考えられる。PRECIP II の解析により計算した金属層中央の酸素濃度は、Test2-1、Test2-2 など ECR が約 13% と高い試料では約 0.5wt% であったのに対し、ECR が約 7% と比較的低い Test2-6、Test2-8 では約 0.3wt% である。Fig. 14 の状態図から、酸素濃度が低くなったことで $\alpha$ -incursion が析出を開始する温度が低くなり、また析出する $\alpha$ -incursion の酸素濃度自体も低くなり、結果として不鮮明であり成長の見られない $\alpha$ -incursion が Fig. 21~Fig. 23 で観察されたものと考えられる。

Fig. 24 において、断面マイクロ写真の画像解析により求めた、被覆管金属層中 $\alpha$ -incursion 単位大きさの度数分布を、遅い冷却 (Test2-1、2 K/s) と速い冷却 (Test2-2、7 K/s) について比較した。遅い冷却を行った Test2-1 では、速い冷却を行った Test2-2 に比べ、単位大きさの大きい $\alpha$ -incursion が全体に占める割合が大きく、酸化温度 1373K の試料の結果と傾向が一致した。ただし、Fig. 16、Fig. 24 に示した結果は Fig. 12、Fig. 17 に示した $\alpha$ -incursion 面積率と同様、画像解析に供する写真の選定、及び画像解析における二値化作業の過程で生ずる誤差を伴うものであり、これらの誤差を考慮するならば、冷却速度により $\alpha$ -incursion 単位大きさに生じた変化は、無視できる程度に小さいと言える。

Fig. 25 に、金相写真の画像解析により求めた、冷却速度及び酸化量による被覆管金属層中 $\alpha$ -incursion 面積率の変化を示す。ただし、酸化量が低く $\alpha$ -incursion と prior- $\beta$  の判別が困難な試料については、画像解析を行っていない。 $\alpha$ -incursion 面積率は酸化量とともに増加するが、1373K で酸化した試料と同様、冷却速度の変化による増減は認められない。

### 3.4. 微小ピッカース硬さ試験

Fig. 26 に、主な Test について測定した $\alpha$ -incursion と prior- $\beta$  相の微小ピッカース硬さを示す。Fig. 26 より、ほぼ全てのケースで、 $\alpha$ -incursion の硬さが prior- $\beta$  相の硬さを上回っており、これから $\alpha$ -incursion が prior- $\beta$  相よりも平均して硬いと言える。Komatsu らの実験において硬さと酸素濃度がほぼ比例することが示されており、これによれば $\alpha$ -incursion 中の酸素濃度が prior- $\beta$  相に比べ高いことになり、状態図 (Fig. 14) から予想される結果と一致する<sup>4)</sup>。また $\alpha$ -incursion と prior- $\beta$  相の硬さの差は、冷却速度の小さいケースでより大きくなる傾向が見られる。冷却速度が小さく、冷却開始から時間が経過した試料ほど、拡散によって $\alpha$ -incursion により多くの酸素が集まり、逆に残った prior- $\beta$  相中の酸素濃度は減少するという、2つ相への分離が進行しているものと考えられる。硬さ試験の結果より、等温酸化直後の平坦に硬さが分布した状態から、徐冷をおくことによって、やや硬い析出物が間隔をおいて prior- $\beta$  相内に分布した状態に変化することがわかった。 $\alpha$ -incursion の硬さは安定化 $\alpha$ 相の硬さ (測定した全試料の平均



値は 740Hv) に比べればずっと小さいものであるが、析出の仕方によっては被覆管の延性に影響を及ぼす可能性はあるものと考えられる。

### 3.5. 酸素定量分析

Test2-3 (11.2%ECR、2 K/s)、2-4 (10.0%ECR、7 K/s)、2-5 (10.1%ECR、2 K/s) で酸化・急冷した試料について行った酸素定量分析の結果を以下に示す。Fig. 27 に、被覆管径方向の酸素濃度分布測定 (Fig. 6、A) の結果及び PRECIP II による径方向酸素濃度分布解析の結果を併せて示す。また Table 2 に、被覆管金属層中央約 100  $\mu$ m 矩形内の平均酸素濃度 (Fig. 6、B)、及び  $\alpha$ -incursion と prior- $\beta$  相それぞれの酸素濃度 (Fig. 6、C) についての測定結果を示す。

Fig. 27 で、測定値と解析値の間には、絶対値に有意なずれがあるものの、測定値された径方向分布は解析結果に近い。また解析値が示す通り、実際の金属層中酸素濃度には、肉厚方向中央と安定化  $\alpha$  相付近とで 2 倍程度の差があることがわかった。測定値と解析値とで絶対値を比較すると、Test2-4 で比較的良好に一致しており、Test2-3 と Test2-5 でその差が比較的大きい。この違いは、両者の間の徐冷過程の冷却速度が異なることによるものと考えられる。すなわち、Test2-4 では比較的速い徐冷を行っており、3.4 で述べたような、2つの状態への分離の進行は小さい。この結果、被覆管金属層中酸素濃度の局所的なばらつきが小さいうちに急冷を迎え、平均的な酸素濃度を計算した解析解と近い状態であったものと考えられる。また測定値と解析値との差が大きい Test2-3 と Test2-5 では、測定値の殆どが解析値を下回っている。これは徐冷過程を経ることによる酸素濃度の局所的なばらつき拡大のみでは説明できず、2.3.4 に述べた測定上の調整に原因があるものと考えられる。すなわち、A の測定では分析範囲にほぼ同じ面積の  $\alpha$ -incursion (析出) と prior- $\beta$  相 (母相) が含まれるように測定位置を調整したため、これら 2 種の領域の何れに関しても境界付近の酸素濃度を測定したことになる。特に  $\alpha$ -incursion については、高温域で析出した  $\alpha$ -incursion が徐冷されながら成長すると、状態図 (Fig. 14) から、 $\alpha$ -incursion の周辺部では中心部に比べて酸素濃度が低くなると考えられる。本分析においては、高酸素濃度の  $\alpha$ -incursion 中央領域を避けた測定をしたことになり、解析解が示す平均的な酸素濃度より低い測定値のみが得られたものと考えられる。Table 2 に示す、金属層中央の平均酸素濃度測定結果も、この推測を裏付けるものである。すなわち、3 ケース何れについても中央領域の平均酸素濃度が Fig. 27 の対応する領域 (横軸にしておよそ 0.25~0.35mm の範囲) の測定値よりも大きく、その差が大きいのは Test2-3 と Test2-5 である。これらの平均値は Fig. 27 の対応する領域の測定値に比べ解析結果により近いもので、A では平均酸素濃度を下回る領域を選択的に測定した結果となっていることを示している。さらに、唯一  $\alpha$ -incursion 中央に範囲を絞って行った C で得られた酸素濃度が、A、B に比べ特に高かったことも、 $\alpha$ -incursion 内に中央付近を頂点とする酸素濃度勾配が存在する可能性を示すものである。

径方向酸素濃度分布測定結果における測定値を解析値のずれは、 $\alpha$ -incursion により生じる濃度のばらつきにより説明しうるもので、平均的な酸素濃度分布のみを扱う解析としては、Test2-4 に見られるように、PRECIP II は実際の酸化された被覆管内の酸素濃度分布をよく再現していると言える。また  $\alpha$ -incursion の酸素濃度は prior- $\beta$  相領域に比べ高く、硬さ試験の結果と併せて、

$\alpha$ -incursion の被覆管の延性低下に対する寄与を示唆している。さらに酸素濃度分析の複数の結果は、 $\alpha$ -incursion の成長においては、徐冷過程において高温領域でまず高酸素濃度の  $\alpha$ -incursion が生じた後、温度低下に伴いその周りを囲う様に比較的酸素濃度の  $\alpha$  相が形成されるという過程を経ることを示唆するものであった。

### 3.6. リング圧縮試験

#### 3.6.1. 荷重-変位曲線

リング圧縮試験により得られた荷重変位曲線を Fig. 28、Fig. 29、Fig. 30 に示す。それぞれ Test1-1~Test1-4、Test1-5~Test1-8、Test2-1~Test2-10 において酸化・急冷した試料に対する結果である。各図には、1 ケースにつき 1 本の荷重-変位曲線に加えて、弾性限界点での荷重-変位曲線の傾きに等しい傾きを持つ 2 本の直線、そして初期クラック点を示す×マークを併せて示した。2 本の直線のうち左側の 1 本は弾性限界点を通り、右側の 1 本は、荷重が最大値の 80% となる点を通る。これら 2 本の直線間の x 軸方向距離が、荷重-変位曲線から得られる情報を整理するために用いた被覆管の延性の指標、 $L_{0.8}$  である (2.3.2 を参照)。

Fig. 28 では等温酸化温度及び時間が等しく急冷開始温度の違う試料を比較している。急冷開始温度の最も低い Test1-1 (1073K から急冷) では、初期クラック発生後の荷重の減少は急峻である。Test1-2 から Test1-4 (1173K→1373K) へと急冷開始温度が高くなるにつれ、荷重の減少はより緩やかになる。Fig. 29 では、等温酸化温度及び時間が等しく徐冷過程の冷却速度のみ異なる Test1-5~Test1-8 の結果を比較している。荷重-変位曲線の形状に Fig. 28 に見られたような明らかな差は表れていない。Fig. 30 では 1473K で異なる時間酸化し 2 あるいは 7 K/s で冷却した Test2-1 と 2-2、Test2-5 と 2-6、Test2-9 と 2-10 の結果を示している。3.2 で示したように、このグループでは試料間に有意な酸化量の差がある。酸化量の小さい試料 (Test2-6、Test2-10 等) で荷重減少が比較的緩やかなものになっている。

#### 3.6.2. 被覆管の延性に対する徐冷過程の冷却速度の影響

急冷開始温度を一定 (1373K) とし酸化時間及び徐冷速度を変化させた Test1-5~Test2-12 について、初期クラックが生じるまでのクロスヘッド変位 ( $L_c$ ) と表面積当たりの重量増の関係を Fig. 31 に、 $L_{0.8}$  と表面積当たりの重量増の関係を Fig. 32 に示す。両図を比較すると、 $L_c$  は重量増に対して同一条件試料内でも大きくばらついており、重量増との相関も見られない。これに対して  $L_{0.8}$  については、図中でプロットされた点が酸化温度 1373K の群と 1473K の群とで大きく 2 つに別れるが、それぞれの群の中では何れも重量増と  $L_{0.8}$  が明確な負の相関を示していることが見て取れる。このことから、本研究で行ったリング圧縮試験結果を整理するための被覆管の延性の指標として、 $L_{0.8}$  がより適切であることがわかる。

被覆管の延性が冷却速度の有意な影響を受けている場合には、重量増が等しく冷却速度のみ異なる試料同士の間で、塑性変形量  $L_{0.8}$  に差が見られる筈である。しかし Fig. 32 においては、1473K

で酸化した試料については冷却速度の大小に関わらず全ての点がほぼ同一の曲線上に分布しており、また 1373K で酸化した試料についてはばらつきが大きいものの、やはり冷却速度の大小と塑性変形量の大小の対応は見られない。これより、冷却速度の変化は、被覆管の延性に有意な影響を与えていないことがわかる。なお、リング圧縮試験に表れる被覆管の延性低下は酸化温度依存性を持ち、1473K で酸化した試料は、1373K で酸化した試料に比べて延性低下の度合いが大きい。

### 3.6.3. 被覆管の延性に対する急冷過程の開始温度の影響

酸化温度及び時間、冷却速度を一定とし急冷開始温度を変えた Test1-1~Test1-4 について、急冷開始温度と  $L_{0.8}$  の関係を Fig. 33 に示す。急冷開始温度が下がると共に被覆管の延性が減少することがわかる。最も急冷開始温度の差が大きい Test1-1 と Test1-4 では、塑性変形量に約 2 倍の差が生じている。Fig. 34 に、Test1-1~Test1-4 について、表面積当たりの重量増と  $L_{0.8}$  の関係を示す。4 試料の間の酸化量の差が非常に小さく、また酸化量が Test1-4 より大きい Test1-2 が、 $L_{0.8}$  では Test1-4 を下回っていることから、Fig. 33 に見られた被覆管の延性低下は、酸素吸収量以外の要素が影響した結果であると考えられる。

急冷後被覆管の延性低下に影響するとされる要素として、金属層中の酸素濃度、prior- $\beta$  相領域厚さ等が挙げられる。Fig. 13 に示したように、急冷開始温度の変化によって酸素濃度分布に差が生じるが、この差は、Fig. 27 で Test2-4 と Test2-5 についての解析結果として見られる、冷却速度の影響により生じた濃度差と比べても小さい。Fig. 27 に表れた程度の酸素濃度分布差によって被覆管の延性に有意な差は生じなかったことから、Test1-4 から Test1-1 への延性低下の原因が平均的な酸素濃度変化によるものである可能性は低い。また Fig. 35 に prior- $\beta$  相領域厚さ(実験値)と塑性変形量の関係を示す。全体に prior- $\beta$  相領域厚さと塑性変形量の間には正の相関が見られ、被覆管の延性低下は prior- $\beta$  相の厚さに依存すると考えられる。ただし、Test1-1~Test1-4 の系列の傾きは他系列と比較して非常に大きい。これは、冷却条件の変化に伴う延性低下を支配する他の要因があることを示唆するものである。

Test1-1~Test1-4 の試料に表れたマイクロ組織の変化で、冷却速度の影響におけるものと異なるのは、急冷開始温度低下に伴い  $\alpha$ -incursion の面積率が増大した点である (Fig. 12)。冷却速度が小さくなることにより  $\alpha$ -incursion の成長が見られた Test1-5~Test2-12 では、個々の  $\alpha$ -incursion 単位大きさに若干の増加が生じたが、金属層に占める面積の割合としては有意な変化が見られなかった (Fig. 17、Fig. 25)。これに対し、急冷開始温度の低下に伴う  $\alpha$ -incursion 面積の変化は単調、大幅な増加である。これらの比較から、Test1-1~Test1-4 において、マイクロ組織の変化の中で被覆管の延性低下に影響したのは、 $\alpha$ -incursion の面積率であると推測される。その機構は以下のように考察される。硬さ試験及び酸素分析の結果によれば、 $\alpha$ -incursion は prior- $\beta$  相に比べて硬く酸素濃度が高い、低延性の析出相である。リング圧縮試験に表れる延性は主に圧縮時に最大周方向応力が発生する周方向位置 (Fig. 5 右図で"Crack"として示した箇所) の性質を反映したものと考えられるが、 $\alpha$ -incursion の面積率が大きい場合には、この位置でも肉厚方向に低延性の領域が多く分布することになる。被覆管の外側表面に生じた亀裂は肉厚方向内側に向かって進展するので、亀裂伝播の経路に低延性領域の割合が増えれば、亀裂はより容易に

進展するようになる。このように  $\alpha$ -incursion 面積率の増大により亀裂の伝播が起りやすい金属層が形成されたことが、Test1-1~Test1-4 で延性低下が生じた原因と考えられる。 $\alpha$ -incursion 面積率と被覆管の延性の関係を、Fig. 36 に示す。また、リング圧縮試験の結果が、試験片中で最大周方向応力が発生する周方向位置のみの性質を反映していることを踏まえるならば、冷却速度についても延性に対する影響が全く無いのではなく、延性のばらつきという形で Fig. 32 に表れているものとして理解できる。すなわち Fig. 32 で、酸化温度 1473K について、冷却速度の小さい試料では冷却速度の大きい試料に比べて延性のばらつきが大きい。3.5 に述べた酸素定量分析の結果にも見られたように、冷却速度の小さい試料では、徐冷中に金属層中マイクロ組織の 2 相 ( $\alpha$  相と prior- $\beta$  相) への分離が進み、急冷後の被覆管マイクロ組織中では  $\alpha$ -incursion の集中する箇所と疎らな箇所が混在した状態となる。リング圧縮試験では比較的局所的な変形が起こるため、変形位置によって延性に違いが生じたと考えられる。また、冷却速度の大きい試料の延性が、冷却速度の小さい試料の平均よりも全体に低い延性を示す傾向が見られる。冷却速度の大きい試料では冷却速度の小さい試料に比べて、同じ重量増でも等温酸化過程で酸素吸収が生じた割合が大きい。これは、冷却速度の大きい試料では実効的に酸化温度が高いことを意味している。3.6.2 で述べたように、酸化温度が高い試料程延性の低下は大きい傾向にあり、実効的な酸化温度の違いが、冷却速度の大きい試料の延性が低く表れた原因と考えられる。

本実験で得られた主要な結果を Table 3 にまとめた。

#### 3.6.4. リング圧縮試験結果整理に用いる被覆管の延性の指標について

原研においては従来から、圧縮試験結果の整理に  $L_{0.8}$  を用いてきた<sup>6)</sup>が、米国アルゴンヌ国立研究所の報告においてはリング圧縮試験結果を  $L_c$  により整理している<sup>5)</sup>。後者は、荷重-変位曲線中に初期クラックを示す変化(荷重の急な落ち込み)が表れた時点で、リング試料は破断していると判断している。

しかし本実験で扱った試料を調べると、荷重-変位曲線に見られる初期クラックの発生に伴う荷重低下時には、被覆管の破壊に直結するような大きな亀裂進展に必ずしも至っていない。試料によっては酸化膜が剥がれ、prior- $\beta$  相領域境界付近に小さな亀裂が生じただけでも、荷重-変位曲線上では明確な荷重低下が見られた。その例を Fig. 37 に示す。はじめの荷重-変位曲線に生じたクラックは被覆管表面近傍のみであり、貫通クラックに至っていない。

荷重-変位曲線に表れた初期クラックが、圧縮試料の破断に直結する貫通クラックであるか否かを判別することは困難である。Fig. 31 で  $L_c$  によって圧縮試験結果を整理したグラフに明確な相関が表れなかった原因の一つは、このように性質の異なるものが混在する初期クラックを延性の指標として用いたことにあると考えられる。これに対し  $L_{0.8}$  は、必ずしも貫通クラック発生時点までの圧縮変位に対応しないことは同様であるが、被覆管の残存延性をよく反映するパラメータであることが経験的にわかっている<sup>6)7)</sup>。

$L_c$  を圧縮試験結果の整理に用いる際に生じる他の問題として、 $L_c$  の定義、すなわち荷重-変位曲線に表れる変化の内、何を持って初期クラックとみなすのかが、 $L_{0.8}$  における様に単純ではないことが挙げられる。初期クラック発生までの塑性変形量という  $L_c$  の定義そのものは単純であ

るが、実際に  $L_c$  を決定するには、先ず様々なパターンを持つ荷重曲線から初期クラックを検出する方法を定義する必要があり、荷重-変位曲線に表れた“荷重の急激な落ち込み”を、荷重の変化量や傾き等、何らかの数値的な条件式で表現せねばならない。どの様な条件式を用いるにしても、最終的には条件式による初期クラックの検出結果と、荷重-変位曲線の観察による初期クラック位置の判断とが、おおよそ一致する様、条件式に用いたパラメータの調整が必要になるだろう。このように初期クラックの定義に伴う困難性により、 $L_c$  は、被覆管の延性を表す普遍的な指標にはなり難い量と言える。

#### 4. 結論

PWR用 17×17 タイプの低スズ・ジルカロイ-4 被覆管を、水蒸気中、1373K~1473K で酸化し、徐冷過程を経て急冷した。急冷開始温度及び急冷前の（徐冷過程での）冷却速度を変化させ、急冷前の冷却条件がLOCA時に起こる被覆管の延性低下に及ぼす影響を調べた。

本実験で調べた条件の範囲においては、急冷後の被覆管の延性に対する、徐冷過程の冷却速度の有意な影響は見られない。ただし、冷却速度の変化に伴って生じたマイクロ組織などの変化が観察されている。第一に、比較的酸化の進んだ（~10%ECR 以上）試料では、冷却速度が小さくなることにより、徐冷中に prior- $\beta$  相領域に析出した  $\alpha$ -incursion 単位大きさが増加する。一方  $\alpha$ -incursion が金属層中に占める面積率に有意な変化はない。第二に、 $\alpha$ -incursion は prior- $\beta$  相に比べてやや硬いが、その硬さの差は冷却速度が小さくなることで更に広がる傾向にある。これら 2 つの変化は、高温において均一な  $\beta$  相だった金属層の、徐冷過程における  $\alpha$ -incursion と prior- $\beta$  相への分離の進行を示すものである。また、リング圧縮試験の結果で冷却速度の小さい試料の延性のばらつきが大きい。これは、冷却速度の低下に伴い 2 相への分離が進行した結果、局所的な  $\alpha$ -incursion の粗密を生じ、変形が局所化するリング圧縮試験において延性のばらつきが大きくなったためと考えられる。さらに、PRECIP II コードによる解析で得られた被覆管径方向酸素濃度分布によれば、冷却速度の小さい試料で管肉厚中央の濃度が高く、prior- $\beta$  相領域厚さが小さくなるが、 $\alpha$  相境界付近の酸素濃度は逆に低くなるなどの変化が見られた。このように冷却速度に伴う微視的な変化は被覆管の延性に影響を及ぼし得るものであるが、これらの変化は、被覆管の延性上昇に寄与する効果、低下の両方に寄与する効果の双方を含んでいる。調べた範囲において巨視的な特性の変化が表れなかったのは、これらの相反する効果が同時に生じたことに加え、それぞれの因子が延性低下に及ぼす影響が比較的小さいためと考えられる。

一方、急冷開始温度の変化は被覆管の延性低下に有意な影響を示した。急冷開始温度が低くなるとともにリング圧縮試験における被覆管の塑性変形量  $L_{0.8}$  は減少し、急冷開始温度 300K の低下によって (1373K→1073K)、塑性変形量は約 2 分の 1 となった。急冷開始温度の影響として特有であったのは、prior- $\beta$  相全体に占める  $\alpha$ -incursion 面積の割合が増加した点である。冷却速度の効果は被覆管の延性変化として表れなかったこと、硬さ試験や酸素濃度分析結果が  $\alpha$ -incursion の延性の低さを示したことなどの事実を照らせば、この  $\alpha$ -incursion 面積率の増加が、被覆管の延性低下を促進した直接の原因であったと考えられる。すなわち被覆管の外側表面に生じた亀裂は肉厚方向内側に向かって進展するが、 $\alpha$ -incursion 面積率が増加して、亀裂伝播の経路に低延性領域の割合が増えたことによって、亀裂はより容易に進展するようになり、延性低下に至ったものと思われる。

## 謝辞

本研究の実施にあたり、急冷試験をはじめとする諸試験の御指導及び御協力を頂いた燃料安全研究室の大友隆氏、鈴木元衛氏、ニュークリア・デベロップメント(株)の小澤正明氏、原子力エンジニアリング(株)の永井敦也氏に、深く感謝致します。

## 参考文献

- 1) 原子炉安全委員会：安全審査指針集
- 2) K.Komatsu, Y.Takada, M.Mizuta and S.Takahashi : “The Effects of Oxidation Temperature and Slow-Cooldown on Ductile-Brittle Behavior of Zircaloy Fuel Cladding”, MAPI-TM-525, (1976).
- 3) F. Nagase and T. Fuketa : *J. Nucl. Sci. Technol.*, 41[7], 723 (2004).
- 4) H. M. Chung and T. F. Kassener : *J. Nucl. Mater.* 84, 327 (1979).
- 5) Y. Yan, T. Burtseva, M. C. Billone : “Proc. the 2003 Nuclear Safety Research Conference”, NUREG/CP-0185, U.S. NRC, 97-121 (2003).
- 6) 上塚寛、古田照夫、川崎了：JAERI-M 8081, “滞留水蒸気中酸化によるジルカロイ被覆管の脆化” (1979)
- 7) 鈴木元衛、川崎了、古田照夫：JAERI-M 7720, “Zr-H<sub>2</sub>O 反応のシミュレーションコード PRECIP-II の開発と計算結果および実験値との比較” (1978)

Table 1 Test Matrix

Test No.	Oxidation Temperature	Isothermal Oxidation Time	Quenching Temperature	1473 ~ 1373K Cooling Rate	1373 ~ 1273K Cooling Rate	1273 ~ 1173K Cooling Rate
	[K]	[s]	[K]	[K/s]	[K/s]	[K/s]
Test1-1	1373	415	1073	-	2	2
Test1-2	1373	415	1173	-	2	2
Test1-3	1373	415	1273	-	2	2
Test1-4	1373	415	1373	-	2	2
Test1-5	1373	415	1173	-	2	4
Test1-6	1373	415	1173	-	4	4
Test1-7	1373	415	1173	-	9	7
Test1-8	1373	415	1173	-	2	1.2
Test2-1	1473	134	1173	2	2	2
Test2-2	1473	134	1173	20	10	7
Test2-3	1473	72	1173	2	2	2
Test2-4	1473	72	1173	20	10	7
Test2-5	1473	48	1173	2	2	2
Test2-6	1473	48	1173	20	10	7
Test2-7	1473	29	1173	2	2	2
Test2-8	1473	29	1173	20	10	7
Test2-9	1473	15	1173	2	2	2
Test2-10	1473	15	1173	20	10	7
Test2-11	1473	5	1173	2	2	2
Test2-12	1473	5	1173	20	10	7



**Table 2 Results of oxygen analysis**

		Test2-3	Test2-4	Test2-5
Average concentration in central part of metallic layer(B in Fig. 6)		0.43wt%	0.39 wt%	0.43 wt%
Local concentration (C in Fig. 6)	$\alpha$ -incursion	0.67 wt%	0.73 wt%	0.82 wt%
	prior- $\beta$ phase	0.43 wt%	0.39 wt%	0.27 wt%

**Table 3 Summary of test results**

Test No.	$L_{0.8}$	Prior- $\beta$ phase region thickness	Averaged hardness		$\alpha$ -incursion area ratio (min – max)
			$\alpha$ -incursion	Prior- $\beta$ phase	
	[mm]	[mm]	[kg/mm <sup>2</sup> ]	[kg/mm <sup>2</sup> ]	[%]
Test1-1	0.47	0.398	-	-	74-85
Test1-2	0.52	0.398	322	264	40-47
Test1-3	0.65	0.405	-	-	19-22
Test1-4	0.87	0.408	-	-	4-7
Test1-5	0.49	0.401	250	241	33-46
Test1-6	0.53	0.402	-	-	-
Test1-7	0.66	0.400	270	244	42-45
Test1-8	0.45	0.390	305	226	39-45
Test2-1	0.14	0.395	320	200	55-62
Test2-2	0.13	0.408	297	241	62-67
Test2-3	0.24	0.418	344	219	49-61
Test2-4	0.32	0.438	273	252	46-61
Test2-5	0.38	0.424	312	238	51-58
Test2-6	0.52	0.464	260	232	-
Test2-7	0.45	0.439	378	232	42-47
Test2-8	0.66	0.479	244	218	-
Test2-9	0.45	0.453	255	203	-
Test2-10	0.89	0.489	206	209	-
Test2-11	0.62	0.461	275	220	-
Test2-12	1.38	0.501	218	187	-

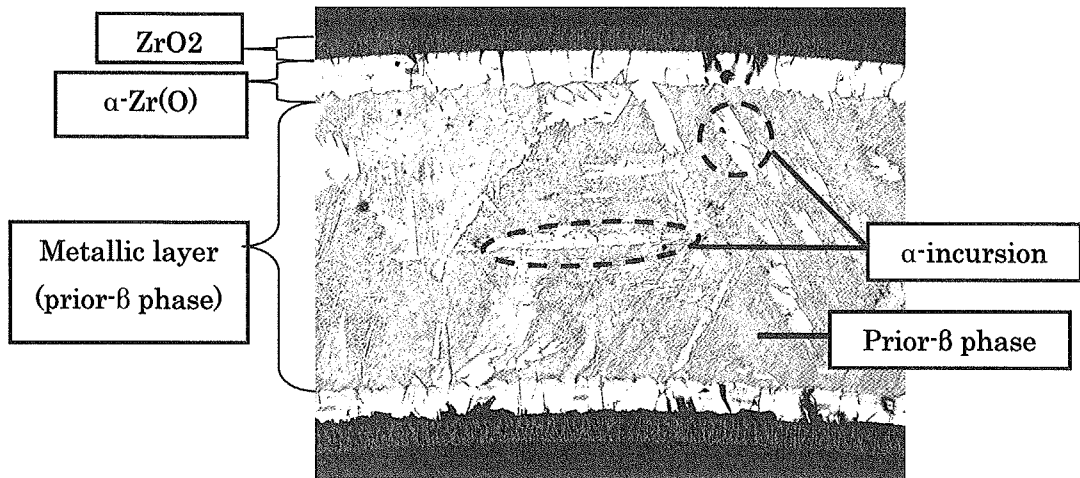


Fig. 1 Micrograph of radial cross section of cladding, oxidized at 1373K for 415s and quenched from 1273K

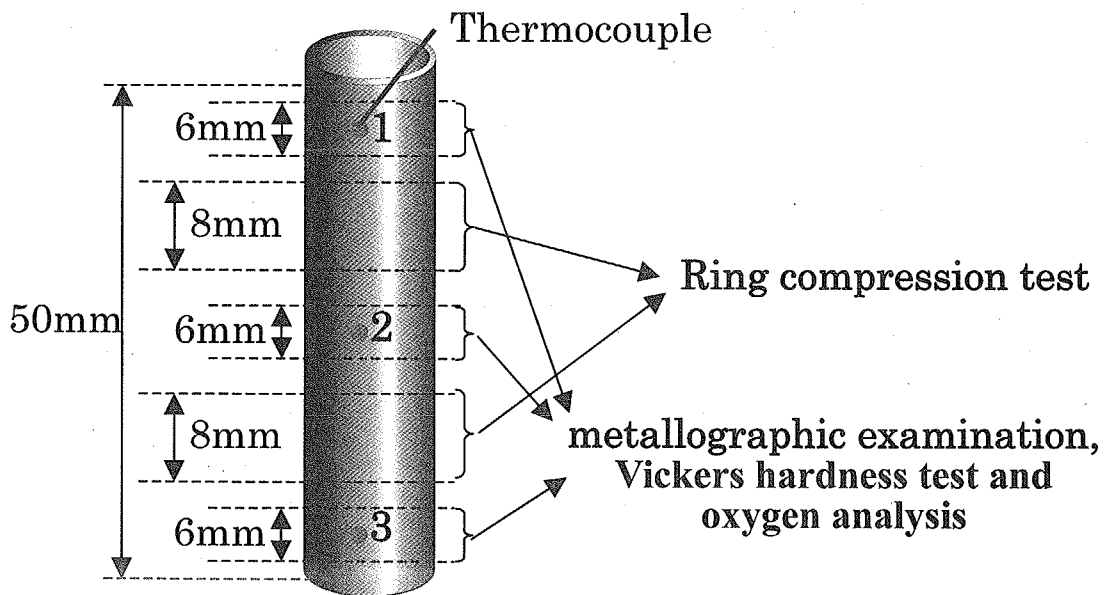


Fig. 2 Cladding specimen for oxidation-quench test

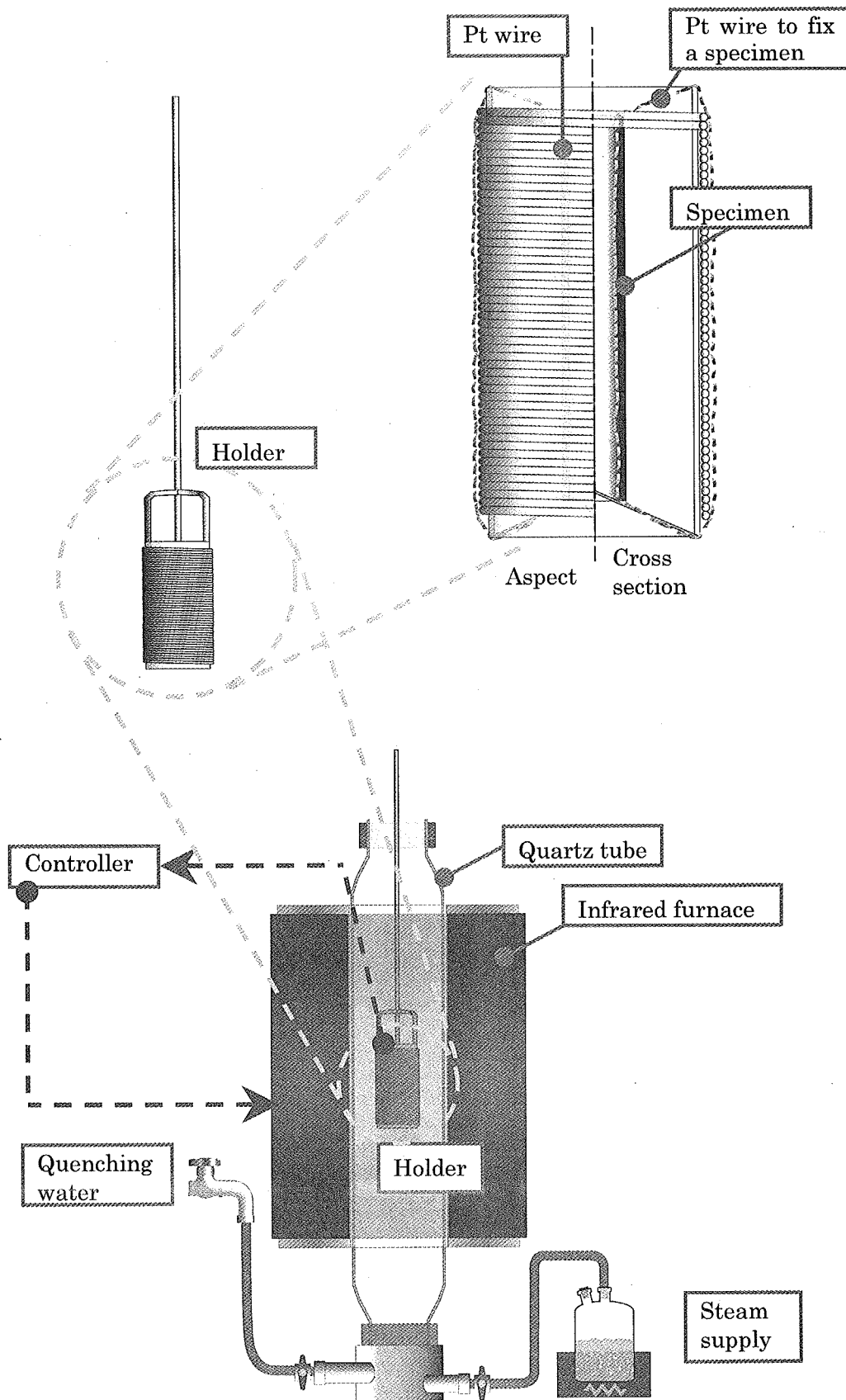


Fig. 3 Test apparatus

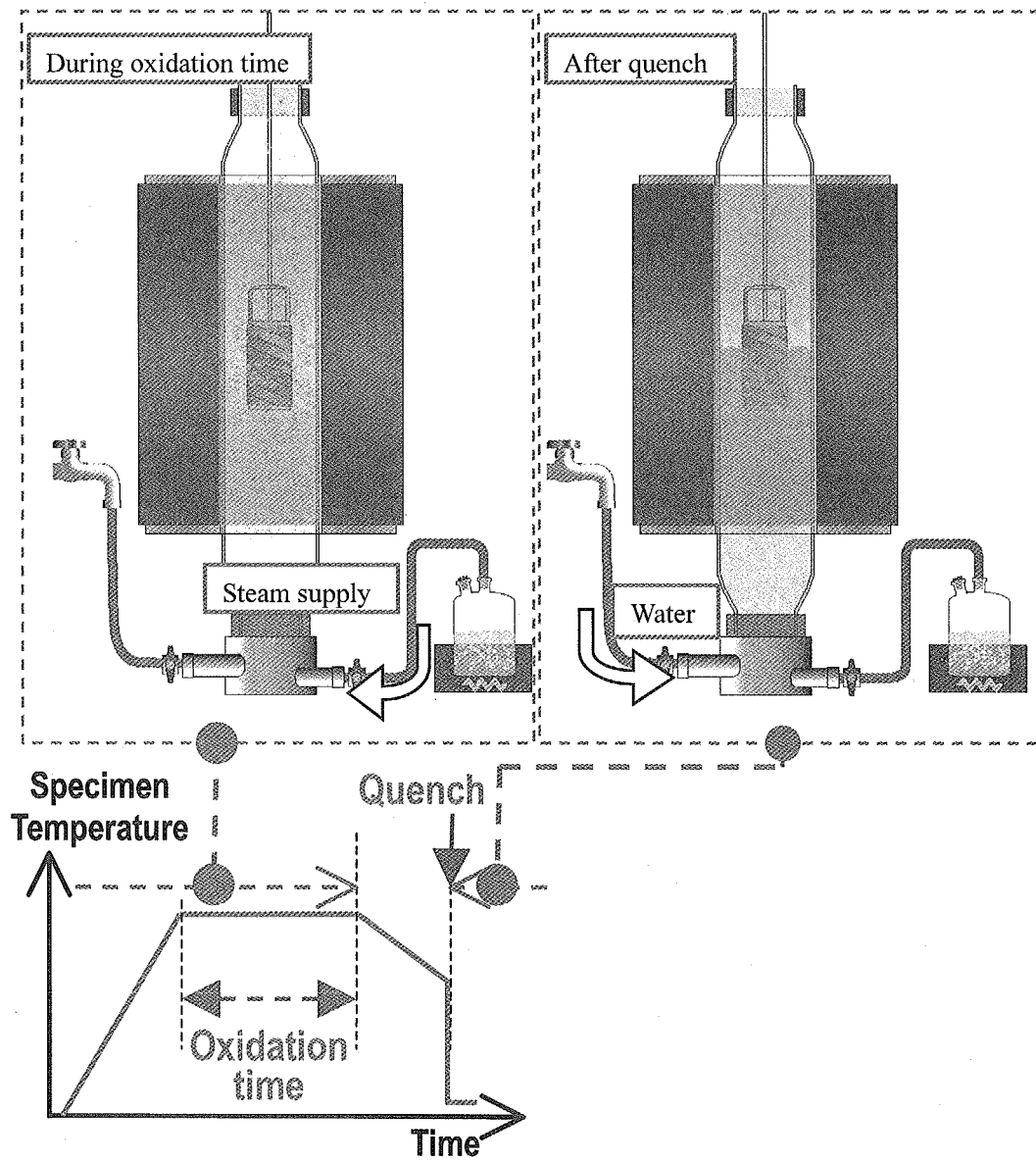


Fig. 4 Test procedure

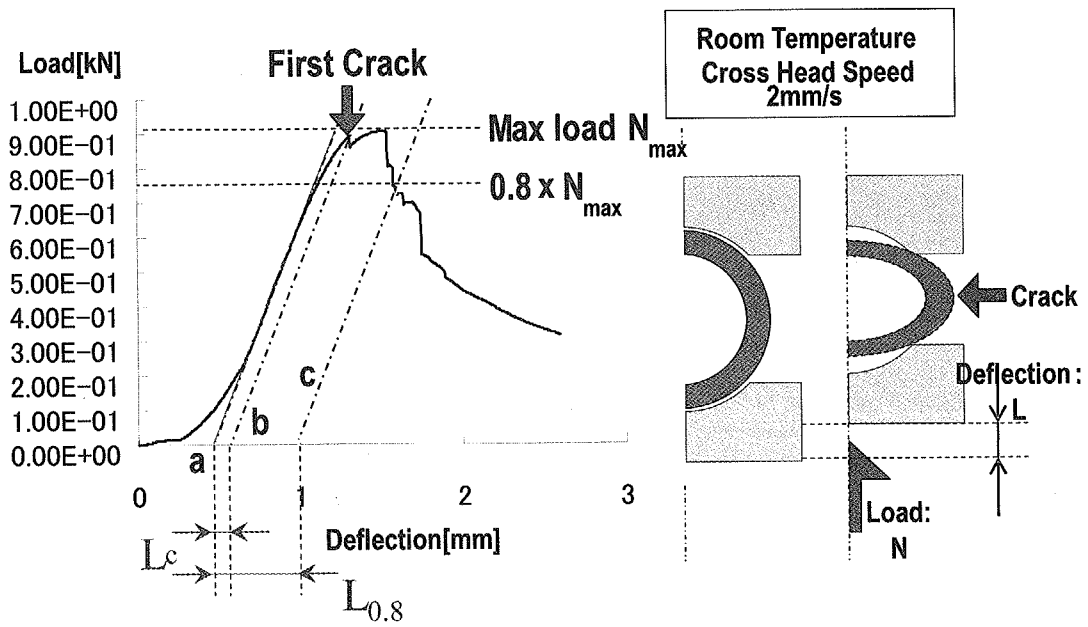


Fig. 5 Schematic of ring compression test and example of load-deflection curve

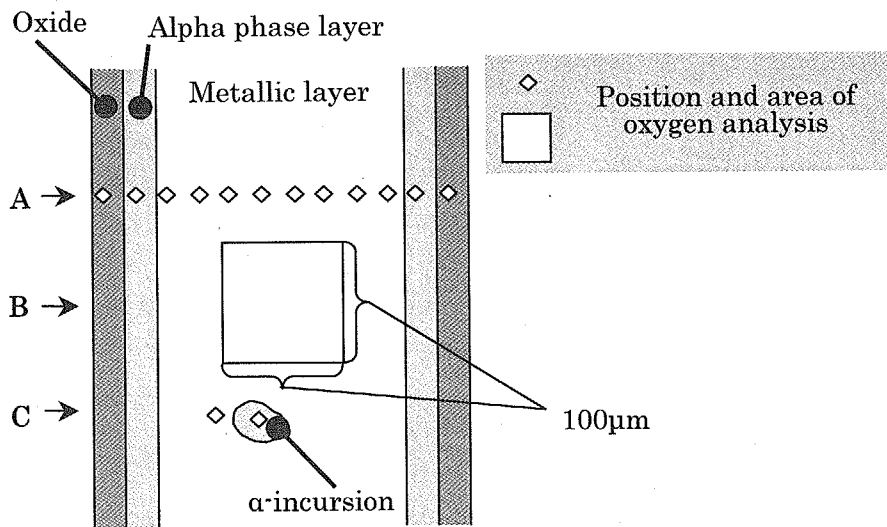


Fig. 6 Position and area of oxygen analysis (A: Spot analysis for radial change, B: Area analysis for average concentration, C: Spot analysis for local concentration in  $\alpha$ -incursion and prior- $\beta$  phase)

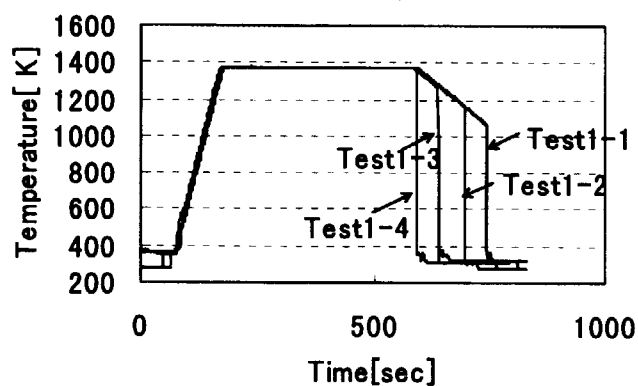


Fig. 7 Temperature histories in Test 1-1 to Test 1-4 ( Specimens were oxidized at 1373K and quenched from different temperatures. )

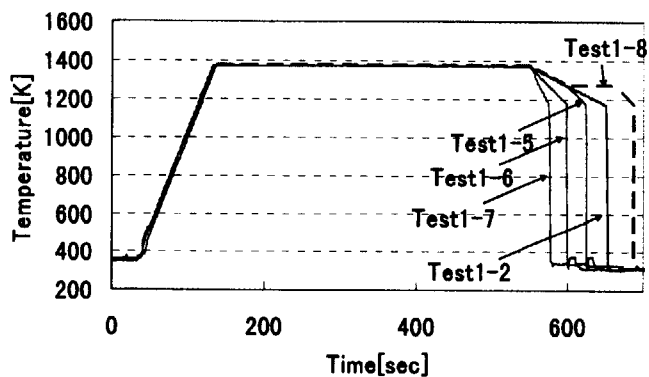


Fig. 8 Temperature histories in Test 1-5 to Test 1-8 ( Specimens were oxidized at 1373K and cooled at different rate before quench. )

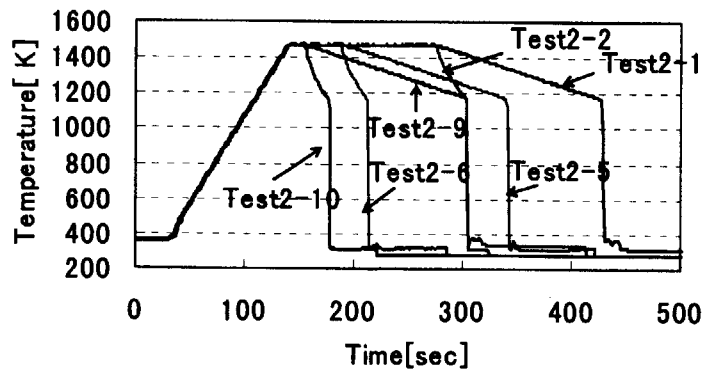


Fig. 9 Temperature histories in Test 2-1 to Test 2-10 ( Specimens were oxidized at 1473K and cooled at different rate before quench. )

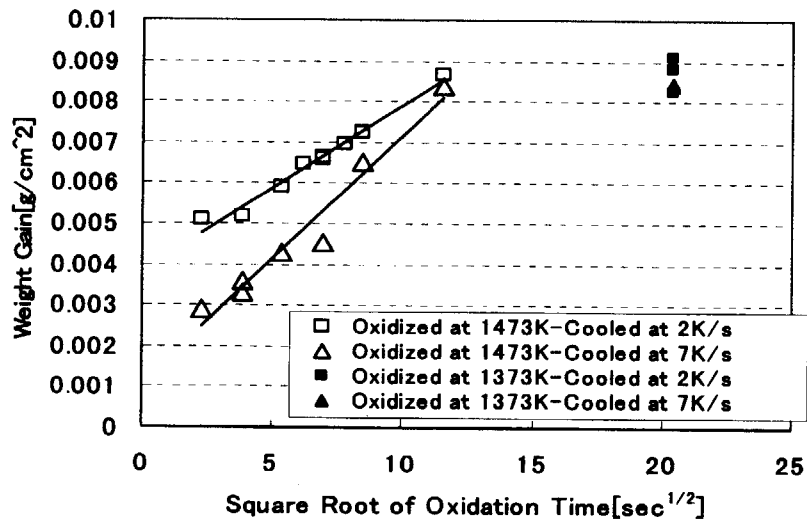


Fig. 10 Correlation between weight gain and square root of oxidation time

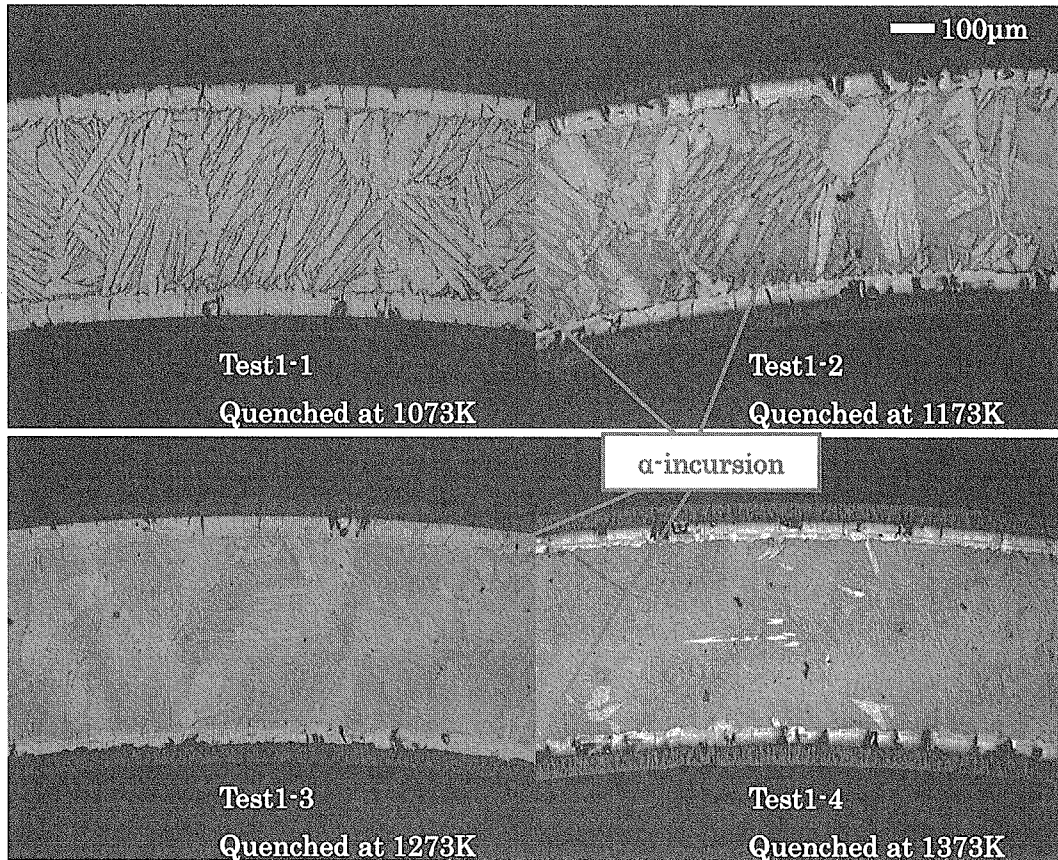


Fig. 11 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1373K for 415 s and quenched from different temperatures

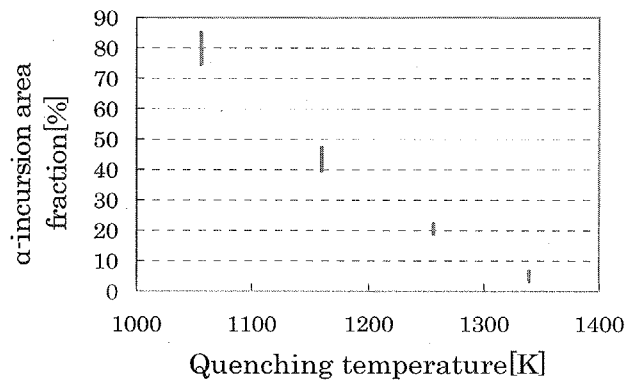


Fig. 12 Area fractions of  $\alpha$ -incursion in metallic layer as a function of quenching temperature (Test1-1 to 1-4)



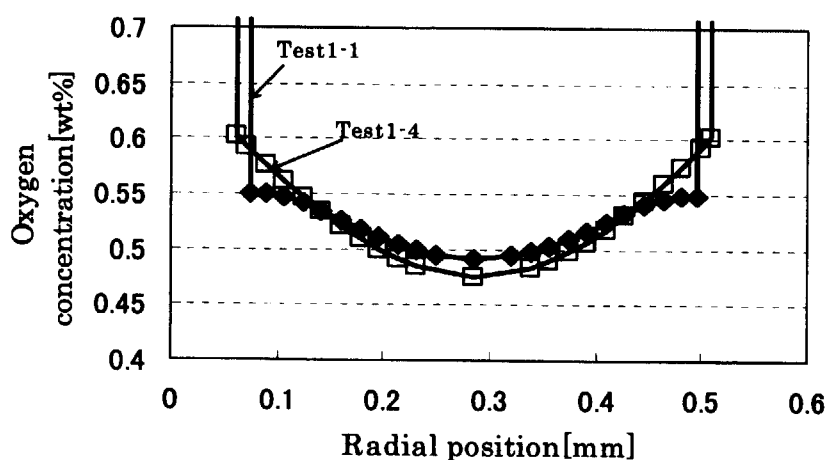


Fig. 13 Radial profiles of oxygen concentration in metallic layer of specimen oxidized at 1373K for 415s (calculated by PRECIP II code<sup>7)</sup>)

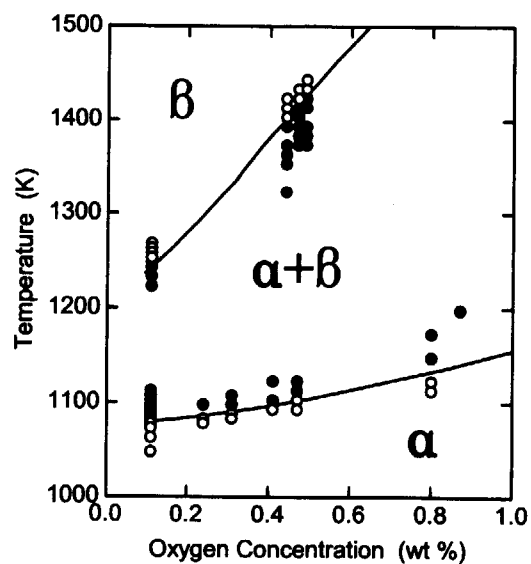


Fig. 14 Pseudo-binary phase diagram of Zircaloy-Oxygen system<sup>4)</sup>

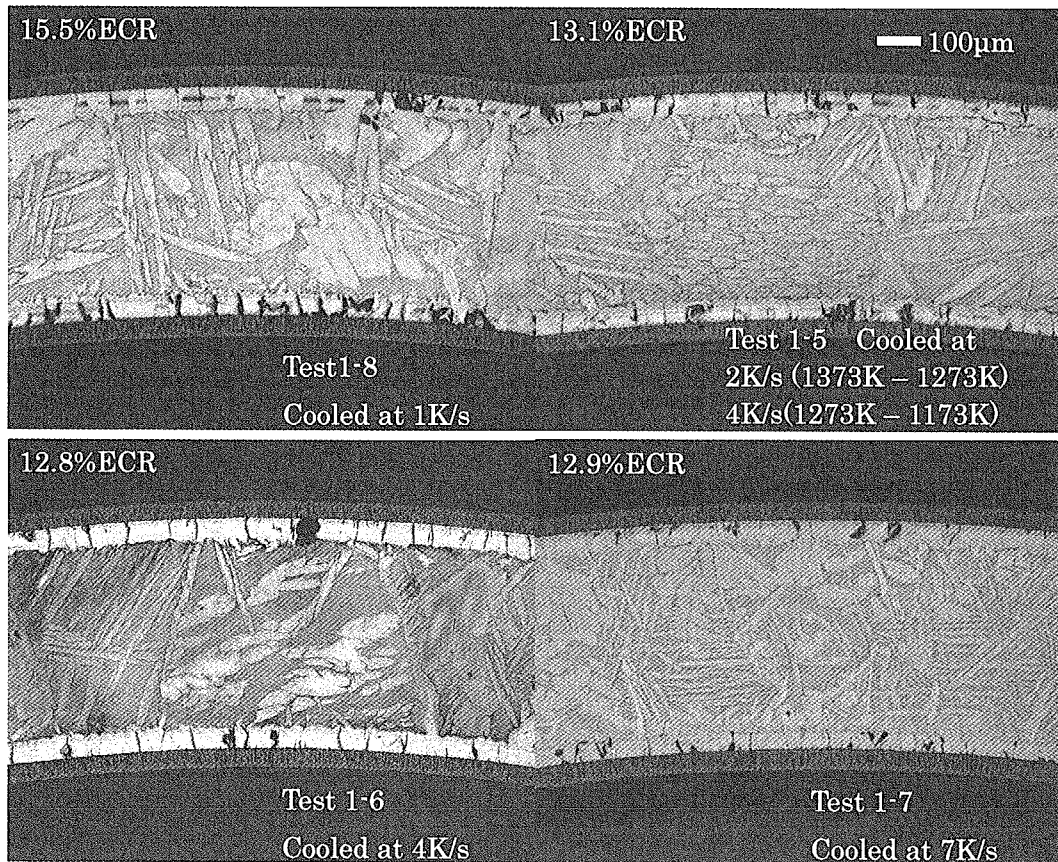
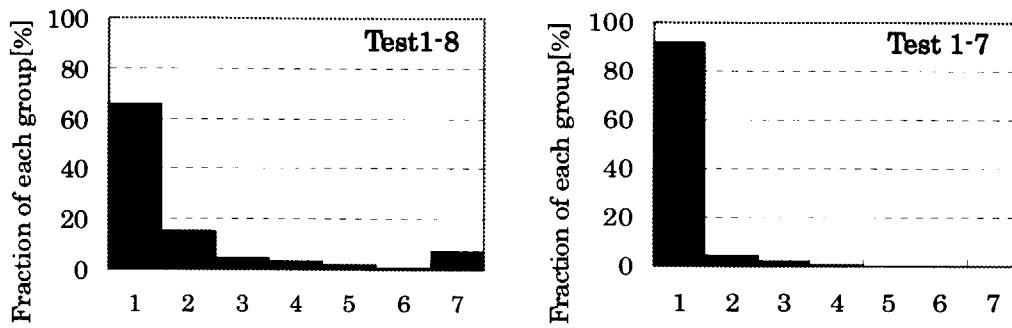


Fig. 15 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1373K for 415s, cooled to 1173K at different rates



group	$\alpha$ -incursion area [ $\mu\text{m}^2$ ]	group	$\alpha$ -incursion area [ $\mu\text{m}^2$ ]
1	0~106	5	424~532
2	106~212	6	532~640
3	212~318	7	640~748
4	318~424		

Fig. 16 Area distributions of  $\alpha$ -incursion in specimens cooled at 1K/s (Test1-8) and 7K/s (Test1-7)

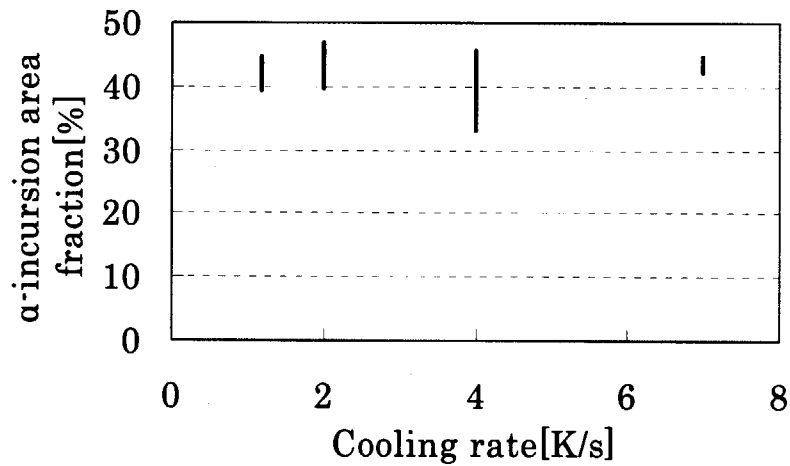


Fig. 17 Area fractions of  $\alpha$ -incursion in metallic layer as a function of quenching temperature (Test1-5 to 1-8)

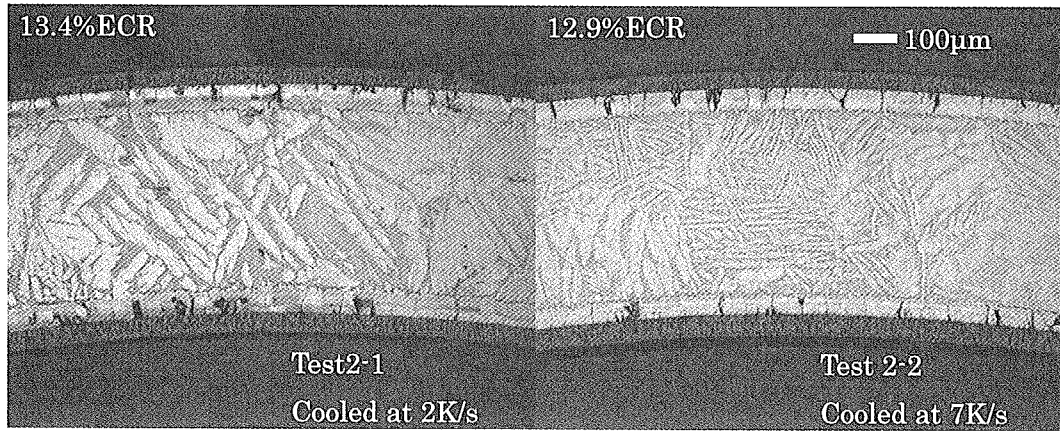


Fig. 18 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1473 K for 134 s and cooled at 2 and 7 K/s before quench

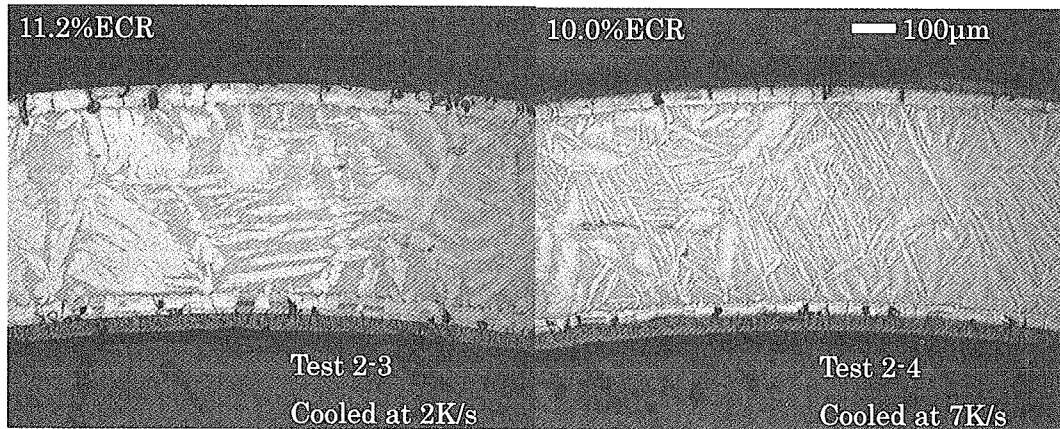


Fig. 19 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1473 K for 72 s and cooled at 2 and 7 K/s before quench

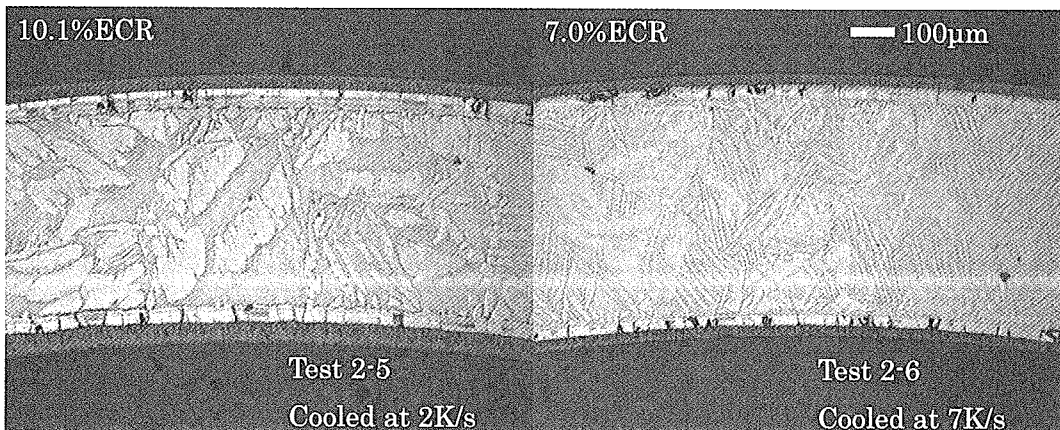


Fig. 20 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1473 K for 48 s and cooled at 2 and 7 K/s before quench

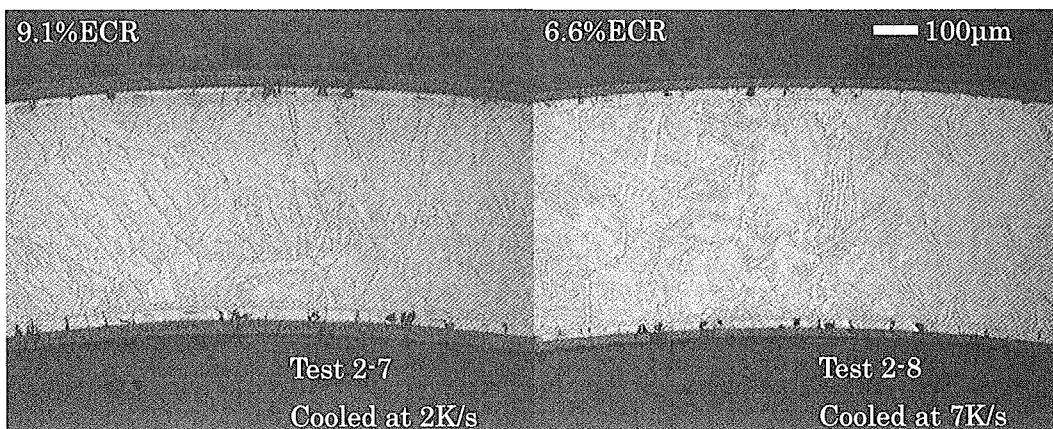


Fig. 21 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1473 K for 29 s and cooled at 2 and 7 K/s before quench

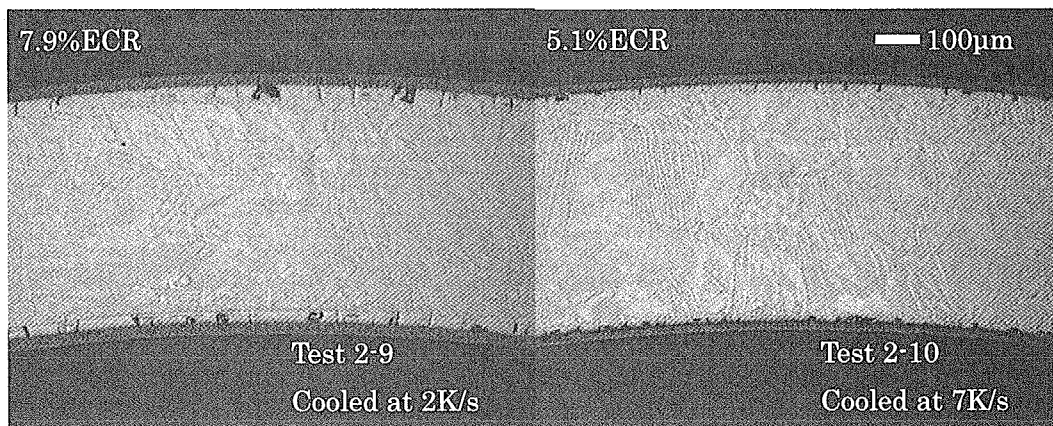


Fig. 22 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1473 K for 15 s and cooled at 2 and 7 K/s before quench

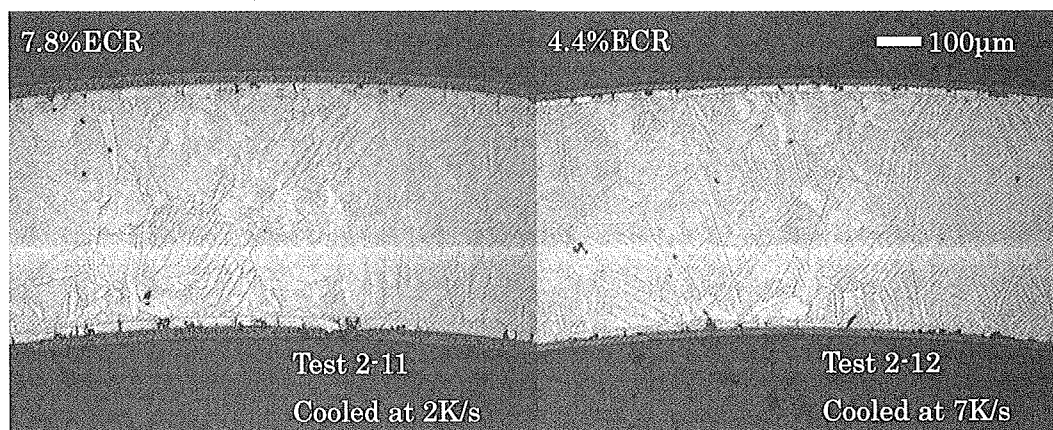
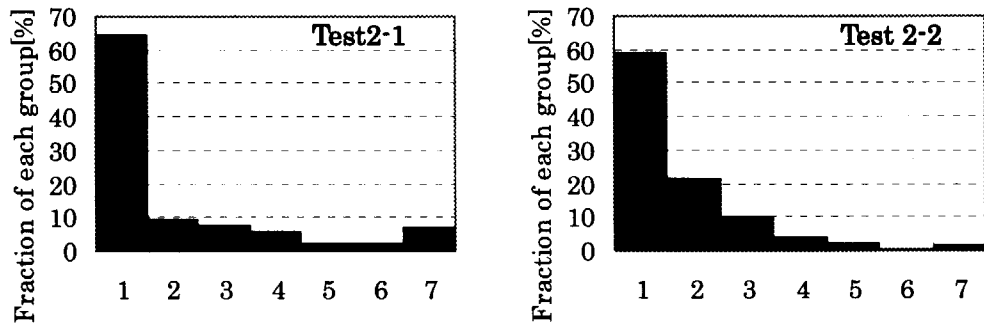


Fig. 23 Micrographs of specimens isothermally oxidized at 1473 K for 5 s and cooled at 2 and 7 K/s before quench



Group	$\alpha$ -incursion area [ $\mu\text{m}^2$ ]	Group	$\alpha$ -incursion area [ $\mu\text{m}^2$ ]
1	0~106	5	424~532
2	106~212	6	532~640
3	212~318	7	640~748
4	318~424		

Fig. 24 Area distributions of  $\alpha$ -incursion in specimens cooled at 2K/s (Test2-1) and 7K/s (Test2-2)

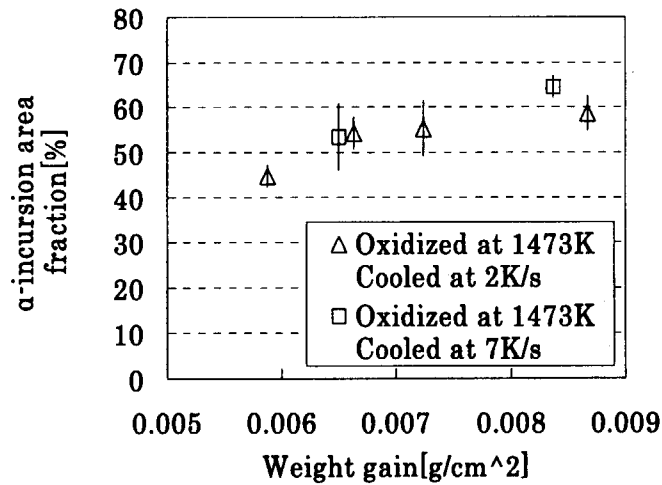


Fig. 25 Area fractions of  $\alpha$ -incursion in metallic layer as a function of weight gain (Test2-1 to 2-12)

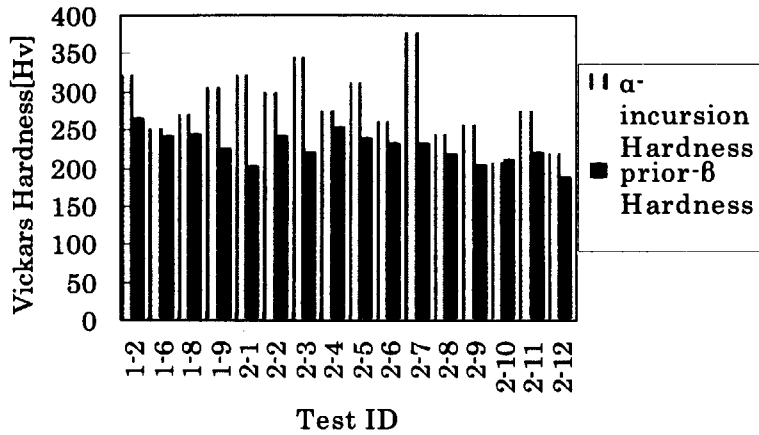


Fig. 26 Micro-Vickers hardness of  $\alpha$ -incursion and prior- $\beta$  phase region

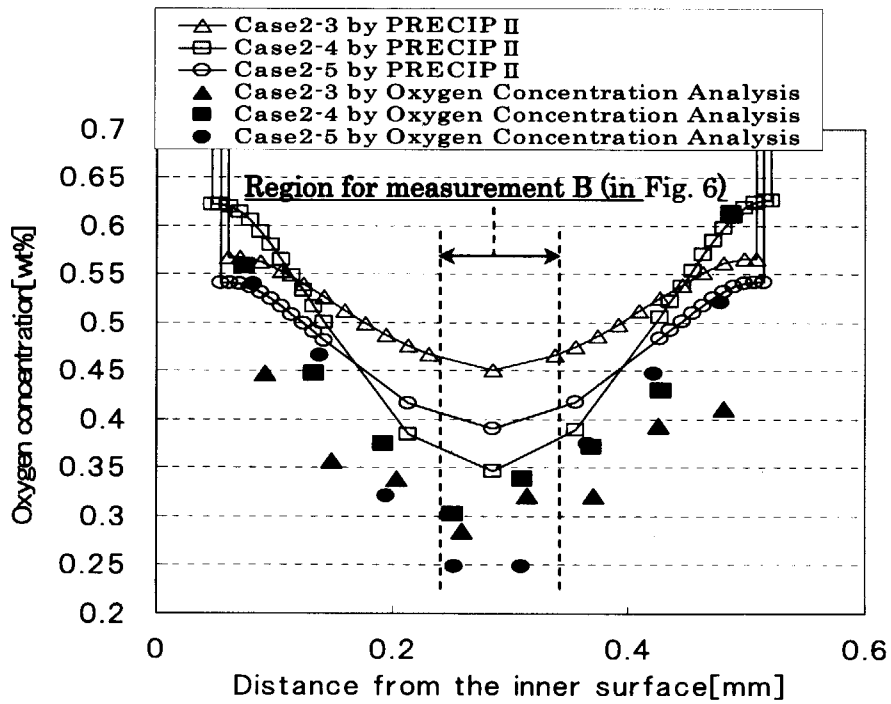


Fig. 27 Measured and calculated radial profiles of oxygen concentration in specimens from Test 2-3, 2-4 and 2-5



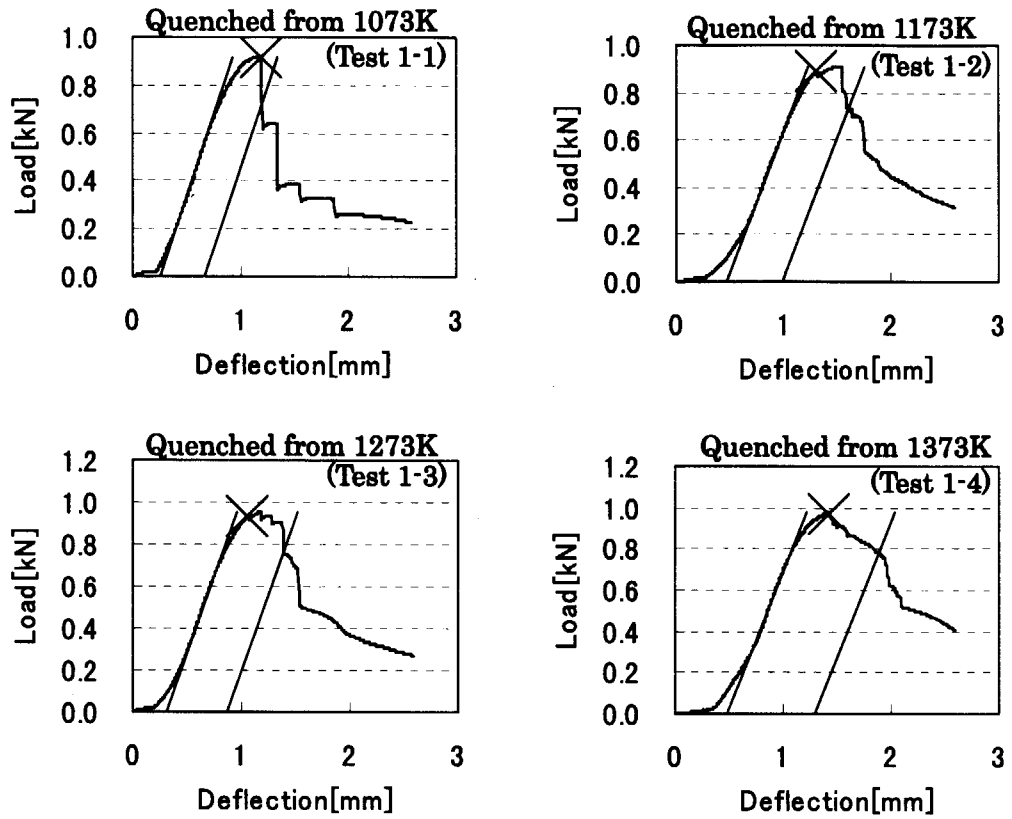


Fig. 28 Load-deflection curves obtained from ring compression tests for specimens isothermally oxidized at 1373 K for 415 s and quenched from 1073 K (Test1-1) , 1173 K (Test1-2) , 1273 K (Test1-3) , 1373K (Test1-4)



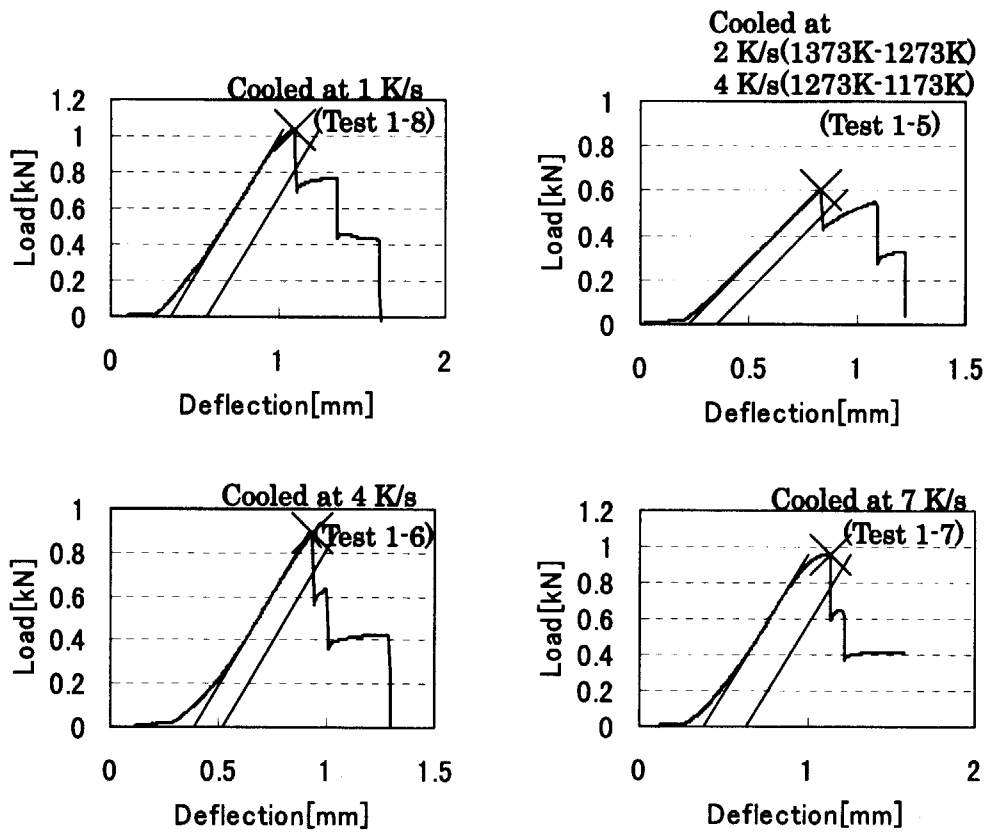


Fig. 29 Load-deflection curves obtained from ring compression tests for specimens isothermally oxidized at 1373 K for 415 s and cooled at 1 K/s (Test1-8) , 2 K/s (Test1-5) , 4 K/s (Test1-6) , 7 K/s (Test1-7)

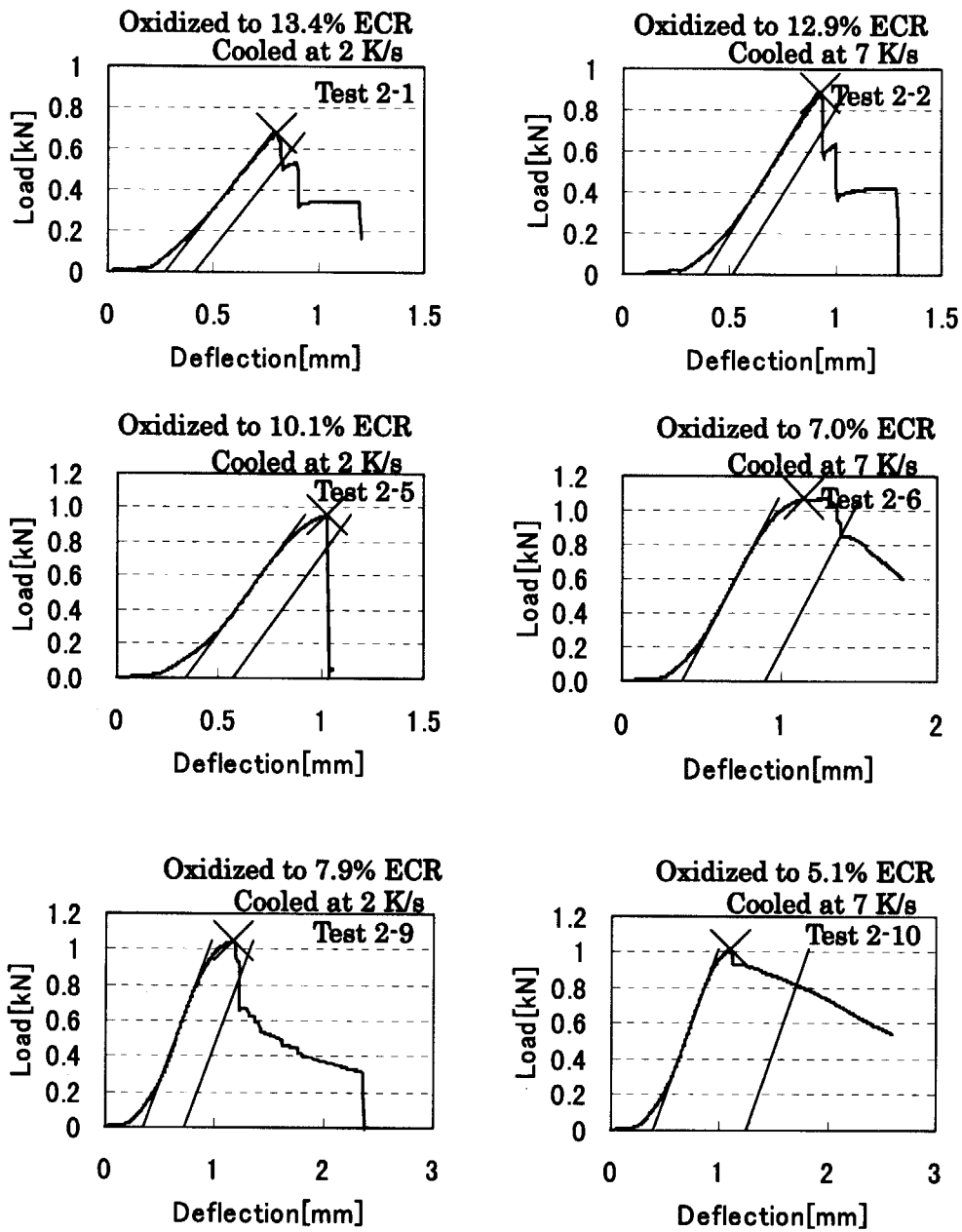


Fig. 30 Load-deflection curves obtained from ring compression tests for specimens isothermally oxidized at 1473 K for 415 s and cooled at 2 to 7 K/s

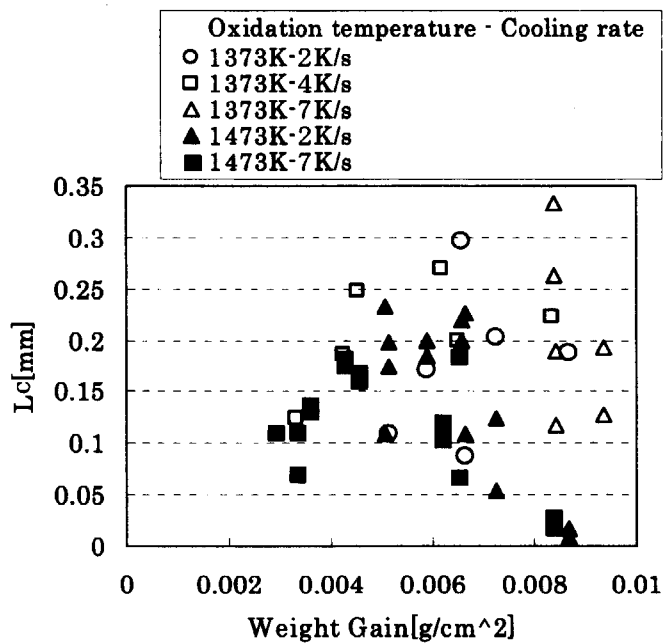


Fig. 31 Correlation between  $L_c$  and weight gain (Test1-5 to 2-12)

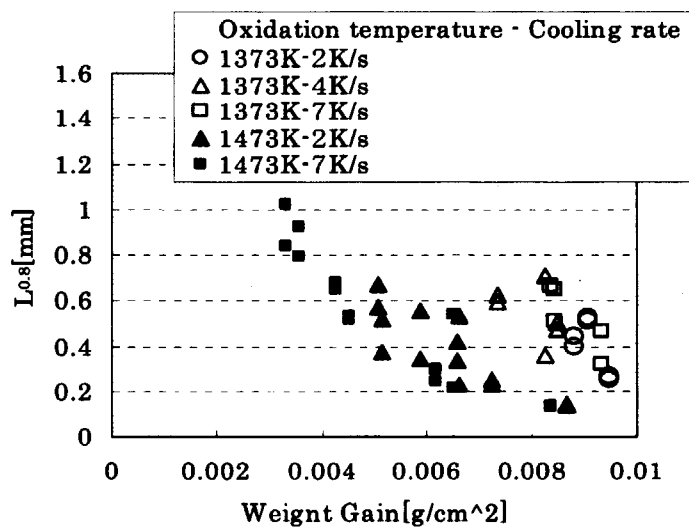


Fig. 32 Correlation between  $L_{0.8}$  and weight gain (Test1-5 to 2-12)

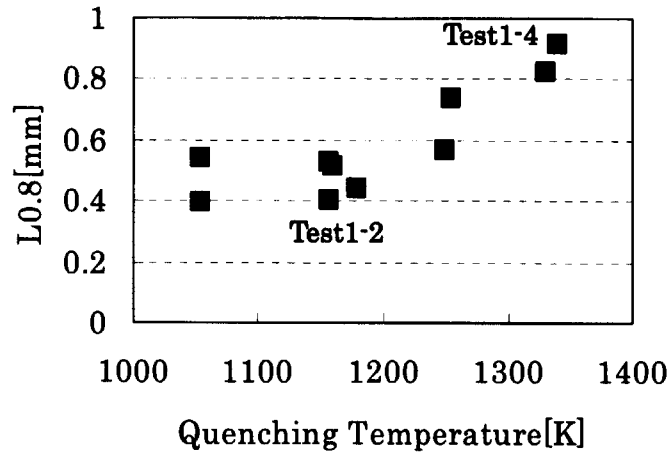


Fig. 33 Correlation between L<sub>0.8</sub> and quenching temperature (Test1-1 to 1-4)

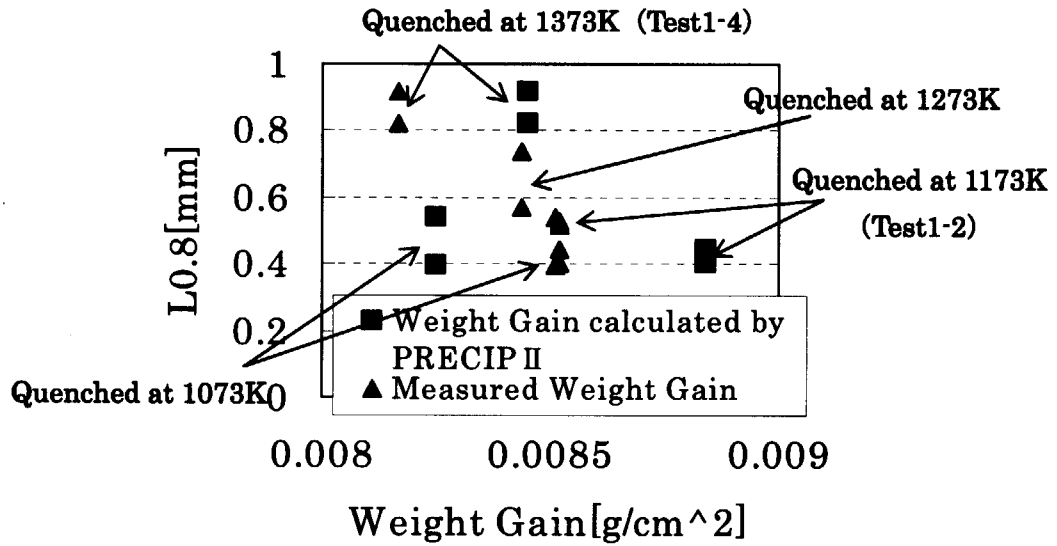


Fig. 34 Correlation between L<sub>0.8</sub> and weight gain (Test1-1~1-4)

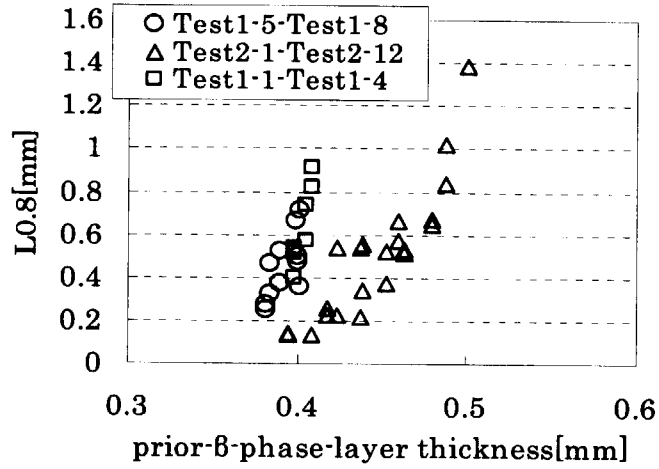


Fig. 35 Correlation between  $L_{0.8}$  and prior- $\beta$ -phase-layer thickness

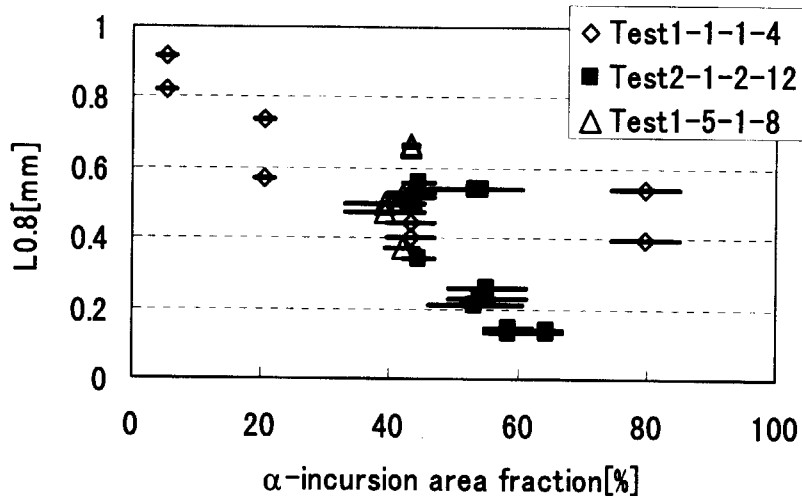


Fig. 36 Correlation between  $L_{0.8}$  and area fraction of  $\alpha$ -incursion in metallic layer

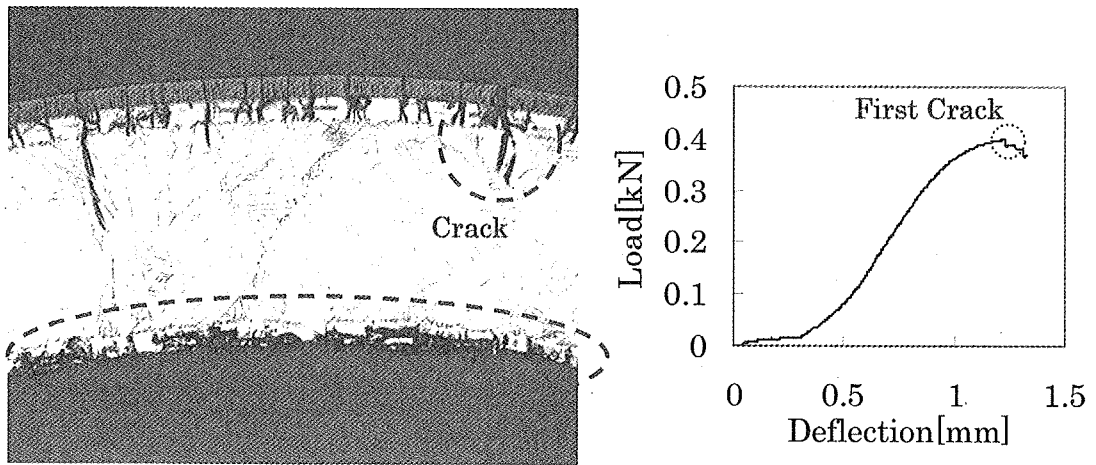


Fig. 37 Incipient cracking occurred at the first drop of load (Test1-7)

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
功率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10<sup>-19</sup>J  
1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バ	bar
ガ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラ	rad
レ	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 b=100fm<sup>2</sup>=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>  
1 bar=0.1MPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/s<sup>2</sup>=10<sup>-2</sup>m/s<sup>2</sup>  
1 Ci=3.7×10<sup>10</sup>Bq  
1 R=2.58×10<sup>-4</sup>C/kg  
1 rad=1cGy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=1cSv=10<sup>-2</sup>Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局1985年刊行による。ただし, 1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- E.C.閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換 算 表

力	N (=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m<sup>2</sup>) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s = 10<sup>4</sup>St (ストークス) (cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg (Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	750062×10 <sup>3</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 <sup>-4</sup>	1.35951×10 <sup>-3</sup>	1.31579×10 <sup>-3</sup>	1	1.93368×10 <sup>-2</sup>
	6.89476×10 <sup>-3</sup>	7.03070×10 <sup>-2</sup>	6.80460×10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813×10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150×10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407×10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487×10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082×10 <sup>19</sup>
	3.6×10 <sup>6</sup>	3.67098×10 <sup>5</sup>	1	8.59999×10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522×10 <sup>6</sup>	2.24694×10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279×10 <sup>-6</sup>	1	3.96759×10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272×10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072×10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515×10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616×10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506×10 <sup>-3</sup>	1	8.46233×10 <sup>18</sup>
	1.60218×10 <sup>-19</sup>	1.63377×10 <sup>-20</sup>	4.45050×10 <sup>-26</sup>	3.82743×10 <sup>-20</sup>	1.51857×10 <sup>-22</sup>	1.18171×10 <sup>-16</sup>	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)  
= 4.184 J (熱化学)  
= 4.1855 J (15°C)  
= 4.1868 J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS (仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

冷却材喪失事故時の被覆管延性低下に及ぼす冷却時温度履歴の影響



古紙配合率100%再生紙を使用しています