

**JAERI-M**  
**90-165**

**高温におけるシルカロイ被覆管とインコネル製  
スパーサーグリッドの反応性**

1990年9月

永瀬 文久・大友 隆・上塚 寛・古田 照夫

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

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）にて、  
お申し込みください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡  
東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

**JAERI-M reports are issued irregularly.**

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

**© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990**

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 ニッセイエプロ株式会社

高温におけるジルカロイ被覆管とインコネル製  
スペーサーグリッドの反応性

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部  
永瀬 文久・大友 隆・上塚 寛  
古田 照夫

(1990年8月30日受理)

加圧水型軽水炉のシビアアクシデントにおける燃料被覆管とスペーサーグリッドの反応を調べるために、ジルカロイ-4管と、インコネル-718製スペーサーを組み合わせた試験片を作製し、1248～1673 K の温度範囲で等温反応実験を行った。アルゴン雰囲気中の試験では、1248 Kでジルカロイとインコネルの接触点で共晶反応が観察された。高温であるほど反応の進行は速く、1373 Kで300秒間反応させた試験片の接触点周囲では、厚さ0.62 mmのジルカロイ-4管の肉厚全てが反応した。また、インコネルより高融点であるジルカロイの方が優先的に溶解した。一方、酸素雰囲気中の試験のうち、1473 K以下の温度では共晶反応は観察されなかった。1573 Kと1623 Kでは、接触点において反応が生じた形跡がみられたが、ジルカロイ管の肉厚減少は観察されなかった。酸素が十分に供給される条件では、ジルカロイ被覆管とインコネル・スペーサーグリッドの間で共晶反応が進行する可能性は小さい。

Interaction between Zircaloy Tube and Inconel Spacer  
Grid at High Temperature

Fumihisa NAGASE, Takashi OTOMO, Hiroshi UETSUKA  
and Teruo FURUTA

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

(Received August 30, 1990)

In order to investigate the interaction between fuel cladding and spacer grid of the pressurized water reactor during a severe accident, isothermal reaction tests were performed at the temperature range from 1248 to 1673K. A specimen consisted of a short Zircaloy-4 cladding tube and a piece of spacer grid of Inconel-718. In the tests in an argon atmosphere, eutectic reaction between Zircaloy and Inconel was observed at the contact points at 1248K. Rapid reaction was observed at higher test temperatures. For example, in the test at 1373K for 300s, Zircaloy reacted with Inconel over the entire thickness (0.62mm) of the tube in the vicinity of the contact point. In the present tests, Zircaloy which has higher melting point than Inconel was dissolved preferentially due to eutectic formation. In the tests in an oxygen atmosphere, no eutectic reaction was observed at temperatures below 1437K. A trace of interaction was found at the contact point of specimen heated at 1573 and 1623K. However, decrease in Zircaloy thickness was not measured. The possibility of eutectic reaction between Zircaloy cladding and Inconel spacer grid seems to be quite limited when sufficient oxygen is supplied.

**Keywords:** PWR, Severe Accident, Zircaloy, Cladding, Inconel,  
Spacer Grid, Eutectic Reaction High Temperature

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 試験方法 .....	2
3. 試験結果と考察 .....	3
3.1 アルゴン雰囲気中試験 .....	3
3.2 酸素雰囲気中試験 .....	5
4. 結 論 .....	6
謝 辞 .....	7
参 考 文 献 .....	8
付録 英文抄録 .....	30

## Content

1. Introduction .....	1
2. Experimental procedure .....	2
3. Experimental results and discussions .....	3
3.1 Experiment in argon .....	3
3.2 Experiment in oxygen .....	5
4. Conclusions .....	6
Acknowledgment .....	7
References .....	8
List of tables and figures .....	30
Appendix Outline of the report .....	31

## 1. はじめに

TM1-2事故以来、燃料集合体の溶融に関する多くの実験が行われてきた。西独・KfK(カールスルーエ原子力研究センター)のCORAX実験<sup>(1)</sup>、米国・SNL(サンディア国立研究所)のDF実験(ACRRによる集合体溶融実験)<sup>(2)</sup>及びINEL(アイダホ国立工学研究所)におけるSFD実験<sup>(3)</sup>やLOFT・LP-FP-2実験などは集合体を約2300K以上の高温に加熱し、その溶融ふるまいを調べることを目的としたものである。特にCORAX実験では、集合体の形状や構成、すなわち制御棒やスペーサーグリッドといったパラメータを変えて実験が行われており、溶融挙動に対するこれらの効果が調べられている。このような集合体溶融実験でも明らかにされつつあるように、1500Kを越えるような温度においては、炉心構成材中では比較的低い融点を持つ金属の溶融や炉心材料間の反応が集合体溶融の過程を考える上で重要となる。集合体を用いた溶融実験は、溶融の全体的な進展を調べるためには不可欠な実験であるが、溶融の初期段階を把握するための知見、つまり炉心材料間の反応開始温度や反応速度についてのデータの取得は期待できない。そのため、個々の炉心材料の高温挙動や炉心材料間の高温反応を調べるための試験(separate effect test: 分離効果試験)を行い必要なデータを取得しなければならない。炉心材料間の高温反応に関するデータは西独KfKのP. Hofmannらによって報告されているが<sup>(4)</sup>、限られた反応系や試験条件下でのデータが得られているにすぎず、十分なものではない。

このような理由から原研においても、1100から1700K程度までの温度範囲で炉心材料間の反応を調べ、生成反応層の詳細や反応速度に関するデータを得ている<sup>(5)(6)(7)(8)(9)</sup>。高温において注目すべき炉心材料のふるまいや反応としては、ジルカロイの酸化、銀-インジウム-カドミウム(Ag-In-Cd)制御棒合金(融点約1100K)の高温挙動、B<sub>4</sub>C/ステンレス反応、Ag-In-Cd合金/ジルカロイ反応、ジルカロイ/インコネル反応、ジルカロイ/ステンレス反応、UO<sub>2</sub>/ジルカロイ反応等がある。これらのうち、制御棒材料の係わる反応は比較的低い温度で始まり、集合体の溶融初期段階で重要である。しかし、CORAX実験のうち、制御棒を含まないPWRタイプ集合体を用いた試験において、溶融反応はインコネル・スペーサーグリッド周辺で始まることが示された<sup>(10)</sup>。従って、ジルカロイとインコネルの反応も集合体溶融において重要な役割を果たすと考えられる。Fig. 1に、ジルカロイとインコネルのそれぞれの主成分であるジルコニウムとニッケルの2元系状態図<sup>(11)</sup>を示す。この図に見られるように、両金属間には最も低い1233Kを含め4つの共晶点があり、シビアアクシデントで想定される温度では共晶反応を起こす可能性が十分ある。仮にジルカロイ被覆とインコネル製スペーサーグリッドの間に共晶反応が生じたとすると、形成された液相は集合体中を流れ落ち、その下の領域の被覆管や燃料ペレットに損傷が及ぶと予想される。しかし、金属表面上に酸化膜をつけた試料では、反応はかなり抑えられることも報告されており<sup>(9)(12)</sup>、実際の事故条件下でのジルカロイとインコネルの反応性は興味ある課題である。

著者らは、ジルカロイをつぼとインコネル片を組み合わせた拡散対を用いた実験から、反応速度に関するデータ<sup>(9)</sup>を得ている。この実験においては、反応に関する基礎的なデータを得るために、拡散対に良好な接触条件を与え、反応試験をアルゴン雰囲気中で行った。実際の集合体においては、ジルカロイ被覆管とインコネル・スペーサーグリッドの接触は点接触であり、事故時における雰囲気は酸化雰囲気（多くの場合は水蒸気雰囲気か水蒸気と水素の混合雰囲気）になる可能性が高い。このような条件下では、この反応の進行が上記の拡散対を用いた試験の結果とは異なることが予想される。また実際のジオメトリにおける反応の広がり方についても知見を得る必要がある。

本報告では、ジルカロイ-4管と、グリッドから切り出したインコネル・スペーサーの一部を組み合わせた試験片を用いて、1248 Kから1673 Kの温度範囲で、アルゴン雰囲気及び酸素雰囲気を実施した等温反応実験の結果を述べる。

## 2. 試験方法

試験片の外観写真と模式図をFig. 2に示す。PWRで一般的に用いられているインコネル-718製（以後単にインコネルと記す）スペーサーグリッドから燃料棒1本分に相当する部分を切り出し、長さ40 mmに切断したジルカロイ-4管と組み合わせて試験片とした。試験に用いたジルカロイ-4とインコネルの化学組成をTable. 1に示す。Fig. 2のupper viewから分かるように、ジルカロイ管とスペーサーグリッドは3点で接している。そのうち2点はA-A'断面に示すようにインコネルの凸部がジルカロイに接し、もう1点はB-B'断面に示すように波状の板の一部が接している。グリッドの高さは約25 mmであり、断面の一辺は約14.5 mm、板厚は0.25 mmである。ジルカロイ-4管の外径は10.72 mm、内径は9.48 mmである。反応試験はFig. 3に示すような装置を用いて行った。装置は、石英反応管（内径40 mm）、赤外線イメージ炉、ガス供給系からなる。試験雰囲気はアルゴン及び酸素である。試験前には十分にガス置換を行い、反応試験中は反応管内に200 ml/mの速度でガスを流した。Fig. 4に反応試験において測定した試料温度履歴の一例を示す。温度測定は、接触点近傍のジルカロイ管上の4点にスポット溶接したPt/Pt-13%Rh熱電対を用いて行った。等温反応試験中における周方向での温度差は最大でも10 K程度であった。昇温速度は10 K/sである。アルゴン雰囲気中試験における試験温度は1248 K (975 °C)~1403 K (1130 °C)、等温保持時間は120秒~3600秒とした。また、酸素雰囲気中試験においては、試験温度は1373 (1100 °C)~1673 K (1400 °C)、等温保持時間は300秒とした。Table. 2に試験マトリックス（試験温度と等温反応時間）を示す。反応試験後、反応の程度を詳細に調べるために、試料を切断し断面組織の観察を行った。断面観察のための機械研磨は耐水研磨紙による4段階（# 400, 800, 1200, 1500）の研磨であり、エッチング液の組成は乳酸：硝酸：蒸留水：フッ酸 = 55 : 19 : 19 : 7（体積比）である。一部の試験片については、元素の移動や分布を調べるためにX線マイクロアナライザー

(EPMA)による元素分析を実施した。

### 3. 試験結果と考察

#### 3.1 アルゴン雰囲気中試験

アルゴン雰囲気中、1248 Kで900秒間反応させた試料の断面写真をFig. 5に示す。ジルカロイとインコネルの接触点位置で共晶反応が見られる。半径方向には、反応領域は被覆管の肉厚の半分程度まで及んでいる。軸方向には当初の接点周囲だけでなくより広い範囲に広がっている。これは形成された液相を介して反応が徐々に広がったため、考えられる。拡散対を用いた実験<sup>(9)</sup>では、共晶反応は1223 K以上で生じている。このことから、被覆管とスペーサーグリッドは点的に接触しているものの、拡散対を用いた実験に比べても反応開始温度はそれほど変わらないと言える。

反応相の拡大写真をFig. 6に示す。共晶反応によりインコネルとジルカロイ間には、2層の反応相が生じる。第I反応層は反応相の大部分の厚さを占め、針状の析出物を含んでいる。第II反応層はインコネルに接している黒色の層である。

Fig. 6に示される反応相の近傍をEPMAを用いて元素分析を行った結果をFig. 7に示す。SE(2次電子)像中に見られる相は右から順に、ジルカロイ、第I、第II反応相、インコネルである。分析を行った元素は、Zrとインコネルの主要構成元素、Ni、Fe、Crである。面分析位置はSE像と同じ位置である。面分析の結果によれば、第I反応相の母相はZr、Ni、Fe、Crがほぼ均一に分布している。また、この相にある析出物にはNiが母相よりも多く含まれている。インコネルに接する第II反応相はCrの含有量が多く、インコネル内よりも高い濃度である。逆にこの相ではNiの含有量は少ない。

Fig. 8は同温度で3600秒間等温反応させた試料の接点付近の断面である。反応はさらに進行し、軸方向6mm以上の範囲でジルカロイは完全に溶解し、薄く残ったインコネルが被覆管の内側までせり出している。拡散対を用いた実験<sup>(9)</sup>でも観察されたが、本実験の場合にも、より高い融点を持つジルカロイの方が共晶反応により優先的に溶解された。この現象は、Fig. 1のNi-Zr 2元系平衡状態図に示されるように、高濃度Zr側(Zr-83/Ni-17wt%)で最も低い融点(960℃)の共晶が生成されることで説明できよう。マイクロ写真を注意深く見ると、A部分では反応生成相は流れ落ち、ジルカロイとインコネルは離れている。B部分では大部分の第I反応層は流れ落ち、薄くなったインコネル、わずかに残った第I反応層、厚さ約300μmの第II反応層が残っている。第I反応層に比べ第II反応層は流れ落ちにくい性質と考えられる。C部分では流れ落ちた溶融物がスペーサーと被覆管の間を埋めているのが見られる。ジルカロイ被覆管の肉厚が減少していることとインコネルに沿って第II反応層が形成されていることから、流れ落ちた溶融物はここでもジルカロイ及びインコネルと反応したことがわかる。接触点から開始した



溶解反応が、溶解物が流れ落ちることでより広い領域まで広がることが確かめられた。

多くの場合、同じ試料であっても接点ごとに反応の程度が異なった。例えば Fig. 9 に示す断面は、Fig. 8 と同一試料の別の接点近傍であるが、この位置での反応量は比較的少ない。従って、アルゴン中、1248 K、3600 秒間の反応により必ずしも Fig. 8 のような広い範囲のジルカロイ溶解が起こるとは言えない。

Fig. 10 はアルゴン雰囲気中、1373 K で 150 秒間保持した試料の軸方向断面である。インコネルがジルカロイの方に押しつけられ、インコネルの湾曲に沿った形でジルカロイが溶解されている。

Fig. 11 は 1373 K で 300 秒間アルゴン中に保持した試料を半径方向に切断し観察した結果である。反応の程度は異なるが、インコネルがジルカロイに接する 3 点 ( 図中の A, B, C ) の何れにおいても共晶反応が起きている。A 点は波状のインコネルがジルカロイに接する位置である。反応前には点接触であったものが、反応が進むにつれ反応領域の幅が広がった。B 点においてはジルカロイ管は完全に反応し、反応生成物も流れ落ちたので被覆には穴が生じた。C 点は B 点と同じ形状の突起が接する点であるが、B 点に比べ反応の度合は小さい。反応の広がりとは同じ試料内でも接触面積や接触圧力等の接触状況に依存して変化すると思われる。つまり、初期の接触圧力が大きければ反応が生じ易くなり、共晶生成物が流れ落ちた場合でも、グリッドがより長い時間被覆管に押し付けられ反応が進むと考えられる。拡散対を用いたインコネル / ジルカロイ共晶反応に関する実験<sup>(9)</sup>により、ジルカロイ肉厚の減少はほぼ 2 乗則に従い、1373 K での反応速度定数は  $2.24 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  であることが報告されている。この関係を用いれば、150 秒後のジルカロイの肉厚減少量は 0.58 mm であり、被覆管の肉厚 0.62 mm は約 170 秒で完全に溶解されてしまうことになる。これに対して、1373 K で 150 秒間反応させた試料 ( Fig. 10 ) で見られる最大のジルカロイ肉厚減少量は 0.51 mm である。また、300 秒間保持した試料 ( Fig. 11 の B 点 ) では被覆に穴が生じている。従って、点接触 ( 被覆管とスペーサーの反応 ) の場合には、被覆管の肉厚減少に多少の時間的な遅れがあると思われる。ただし、反応面積の広がりに関しては、液状の反応生成物広がり、特に軸方向の落下などの影響を考慮する必要がある。

1373 K で 600 秒間等温反応させた試料のマクロ及びマイクロ写真を Fig. 12 に示す。外観写真 ( A ) において、インコネル・グリッドがジルカロイ管に接する近傍のごく狭い範囲 ( 図中矢印 ) で反応が生じているのが観察された。しかし、マクロの断面観察 ( B ) によれば、インコネルの内側で共晶反応は広い範囲に及んでおり、被覆管内面にも溶解が軸方向長さ 4 mm 以上の範囲に広がっていた。ここでも、インコネルに比べジルカロイの方が優先的に溶解された。接点付近で生じた溶解物は、それより下のジルカロイとインコネルの間に流れ込みジルカロイの肉厚を減少させている。Fig. 12 ( C ) と ( D ) に反応領域のマイクロ写真を示す。

Fig. 13 は同じ試料 ( 1373 K, 600 秒 ) で波状のインコネル板がジルカロイ管に接していた位置を含む軸方向断面の写真である。ここでも共晶反応によりジルカロイが溶解され、反応領域は被覆管内面にまで達し、軸方向長さ約 4 mm の穴が開いた。インコネル板の肉厚減少は比較的小さく、初期の位置よりも被覆管側に移動した。このインコネルの移動と、共晶反応で生じた液

相の接触点周囲での広がりによって、反応面積が増加し反応は進みやすくなったと考えられる。

Fig. 14 は 1403 K で 120 秒反応させた試料の観察結果である。この試料でも外面（インコネル側）の反応痕は小さいが、ジルカロイ管内面には長径約 2 mm の楕円形をした明確な溶解反応の痕が見られる。断面組織は前述の試料と同様であり、接触点周囲においては共晶反応によりジルカロイ被覆が溶解され貫通孔が生じた。

以上、1248 K～1403 K の温度範囲で行ったアルゴン中反応試験において、① 1248 K においてジルカロイとインコネルの接触点で共晶反応が生じ、② 高温になるほど反応の進行は速く、1248 K では 3600 秒間、1373 K では 300 秒間、1403 K では 120 秒間でジルカロイの肉厚全てが反応した。また、③ インコネルよりも高融点であるジルカロイの方が共晶反応により優先的に溶解され、④ 反応で生じた溶解物が流れ落ち反応領域が広がるがあった。ただし、⑥ 反応の程度は必ずしも一様でなく、接触状況に依存することが明らかになった。

### 3.2 酸素雰囲気中試験

酸素雰囲気中での試験は 1373 K から 1673 K の温度範囲で行ったが、1373 K 及び 1473 K で試験した結果では、インコネルにもジルカロイにも反応のあとは見られなかった。

1573 K で 300 秒間等温反応させた試料では、反応試験後にインコネルとジルカロイ管の固着は見られなかったが、接触点のインコネル外面に溶解した形跡があった (Fig. 15)。接触点近傍のマイクロ断面写真 (A) でも、反応点付近で 1.6 mm 程度 (軸方向長さ) インコネルが途切れているのがわかる。ジルカロイ管の肉厚は軸方向ではほぼ変化がなく、接触点近傍で  $\alpha$ -Zr(O) の厚さが薄くなるが、内外面とも酸化膜で覆われている。領域 B を高倍率で撮影したマイクロ写真 (B) では、試験初期の接触点 (矢印 C) やインコネルの端部 (矢印 D) において酸化した溶解再固化物の一部を見ることができる。また、インコネルが途切れている領域に対応するところで、ジルカロイの酸化膜の内側の組織が周囲と明かに異なる。その相の形成過程を探るために、その一部 (Fig. 15 (A) 中の E) に対して元素分析を行った。

Fig. 16 はその位置を EPMA を用いて面分析した結果である。分析位置は SE (2 次電子) 像で示される位置である。SE 像では両端に酸化膜、その内側に  $\alpha$ -Zr(O) 相、そして中央部に  $\alpha$ -incursion を含む transformed- $\beta$  相が見られる。マイクロ写真で黒っぽく見える領域は、SE 像では白く見える。面分析の結果によれば、この中央の相には Ni, Fe 及び若干の Cr が含まれている。これらの元素は試験の初期段階にジルカロイと反応したインコネル中の Ni, Cr, Fe がジルカロイ管の肉厚中心部まで拡散したものであろう。インコネルとは反応性の低いジルカロイの酸化膜が形成された後は、共晶反応は停止し酸化が進行したと考えられる。反応時間が長くなった場合でも、 $\beta$  相中の Ni や Fe 等の拡散に比べ酸化膜の形成が支配的であるため、この領域がそれ以降の溶解過程に影響を与えることはないと思われ。これとは逆に、インコネルに侵入した一部のジルコニウムは、高温であるが故に急速にインコネルと反応し、途切れた部分のインコネルを溶解させたと考えられる。

Fig. 17は1623 Kで300秒間保持した試料の断面写真である。インコネルの融点はその化学組成に依存し、一般に1600～1700 Kと言われている。図に見られるように、この試験ではおそらくインコネルの融点を越えたことにより、スパーサーの形状は大きく崩れた。この試料のマイクロ写真においてもFig. 15で示した場合と同様に、インコネルの一部消滅とジルカロイ組織の変化がみられる。ただし、同一試料でも必ずしもこの様な反応の痕がみられるわけではない。

Fig. 18はFig. 17と同じ試料ではあるが、別の接点を含む断面写真である。ここではインコネルにおいてもジルカロイの組織においても共晶反応の痕は見られない。酸化雰囲気の場合、この程度で共晶反応が起こるか否かは、初期の機械的接触条件、酸化の進行程度、インコネルの形状変化に影響されると考えられる。

Fig. 19は1673 Kで300秒間等温保持した試料である。酸化と溶融が進み、インコネルは原形をとどめないほど変形した。断面組織においてもインコネルの表面酸化と内部の溶融、ジルカロイの酸化が顕著にみられる。マイクロ写真においても、共晶反応の痕はみられない。インコネルの酸化や溶融による形状変化やジルカロイの酸化が、共晶反応が生じるよりも早く進んだためであろう。以上の結果より、酸化雰囲気中ではジルカロイ被覆管とインコネル・スパーサーグリッドとの反応は起こりにくいと言える。ただし、この反応は、酸素や水蒸気の供給速度あるいは昇温速度に影響されると考えられる。しかもシビアアクシデント時の炉内条件（温度、昇温速度、酸素ポテンシャル等）は複雑であり、条件によっては十分な酸化が進む前に共晶反応が広がることもあり得る。また、より高温まで達した場合には多量の溶融したインコネルが酸化膜を破って広がり、ジルカロイの酸化膜とも反応する可能性もあろう。

## 4. 結 論

加圧水型軽水炉のシビアアクシデントにおける燃料被覆管とスパーサーグリッドの反応を調べるために、ジルカロイ-4管と、インコネル-718製スパーサーを組み合わせた試験片を作製し、1248～1673 Kの温度範囲で等温反応実験を行った。得られた結論は以下の通りである。

### アンゴン雰囲気中試験

- ・1248 Kで反応させたジルカロイ被覆管とインコネルスパーサーの接触点において共晶反応が生じた。高温であるほど反応の進行は速く、例えば1373 Kで300秒間反応させた試料の接触点付近で、厚さ0.62 mmのジルカロイ-4管の肉厚全てが反応した。反応の進行にともない、生成した溶融物が広がり反応領域が拡大することがあった。
- ・反応の程度は接触面積や接触圧力などの接触状況に依存して変化すると考えられる。
- ・インコネルよりも高融点であるジルカロイの方が、共晶反応により優先的に溶解された。

### 酸素雰囲気中試験

- ・ 1473 K 以下では共晶反応は観察されなかった。
- ・ 1573 及び 1623 K で反応させた試料では、接触点付近に反応が生じた形跡が見られたが、ジルカロイ管の肉厚減少は観察されなかった。試験初期に反応したものの、金属表面の酸化膜形成の進行により、反応は短時間のうちに停止したと考えられる。
- ・ 酸素が十分に供給される条件では、ジルカロイ被覆管とインコネル・スパーカーグリッドとの間で共晶反応が進行する可能性は小さい。

## 謝 辞

試験装置の製作に当たっては分析センターの小原和弘氏に協力して頂いた。記して氏に感謝する。

## 参 考 文 献

- 1) Hagen, S. et al.: Out-of-pile bundle experiments on severe fuel damage, KfK-3677 (1986).
- 2) Gauntt, R.O. et al.: Results of the ACRR-DFR experiments. Proceedings of the international ANS/ENS topical meeting on thermal reactor safety, San Diego, CA, Feb.2-6, 1986.
- 3) Hofmann, P.: Metallographic examination of the severe fuel damage scoping test (SFD-ST) fuel rod bundle cross sections. NUREG/CR-5119 (1988).
- 4) Hofmann, P. et al.: Chemical interactions of reactor core materials up to very high temperatures. KfK-4485 (1989).
- 5) Uetsuka, H. et al.: High-temperature oxidation kinetics of Zircaloy-4 in Oxygen/argon mixtures. J.Nucl.Mater. 168 (1989) 47.
- 6) Uetsuka, H. et al.: Vaporization of silver-indium-cadmium control rod material in flowing argon at high temperature. JAERI-M 85-150 (1989).
- 7) Ootomo, T.: 「高温加熱したAg-In-Cd制御棒材料の金相試験とEPMAによる分析」 to be published.
- 8) Nagase, F.: 「ジルカロイ-銀高温反応」 to be published.
- 9) Uetsuka, H. et al.: High temperature interaction between Zircaloy-4 and Inconel-718. to be published.
- 10) Hagen, S. et al.: Out-of-pile experiments on LWR severe fuel damage behavior, Test CORAC-C and CORA-2. KfK-4404 (1988).
- 11) Massalski, T.B.: Binary alloy phase diagrams, American society for metals, Ohio (1986).
- 12) Warren, M.R. et al.: Incompatibility between Zircaloy-2 and Inconel X-750 during temperature transients. J.Nucl.Mater. 58 (1975) 185.

Table 1 Chemical composition of Zircaloy-4 and Inconel 718.

Zircaloy-4		Inconel 718	
Sn	1.44wt%	Ni	53.4 wt%
Fe	0.20	Fe	18.3
Cr	0.10	Cr	17.9
Fe+Cr	0.30	Mo	3.1
Al	<50wtppm	C	0.05
B	<0.4	Si	0.11
Cd	<0.4	Mn	0.35
C	73	P	0.003
Co	<10	S	0.005
Cu	<20	Cu	0.01
Hf	53	Al	0.53
Mg	<1	Ti	1.01
Mn	<20	B	0.004
Mo	<20	Co	0.1
Ni	<50	Nb+Ta	5.17
Si	<60		
W	<40		
U	<1		
O	1270wtppm		
H	7		
N	52		
Zr	Rem.		

Table 2 Test matrix

Tests in Ar		Tests in O <sub>2</sub>	
Temp. (K)	Time(s)	Temp. (K)	Time(s)
1248	900	1373	300
	3600	1423	300
1303	600	1473	300
1373	150	1573	300
	300	1623	300
	600	1673	300
1403	120		

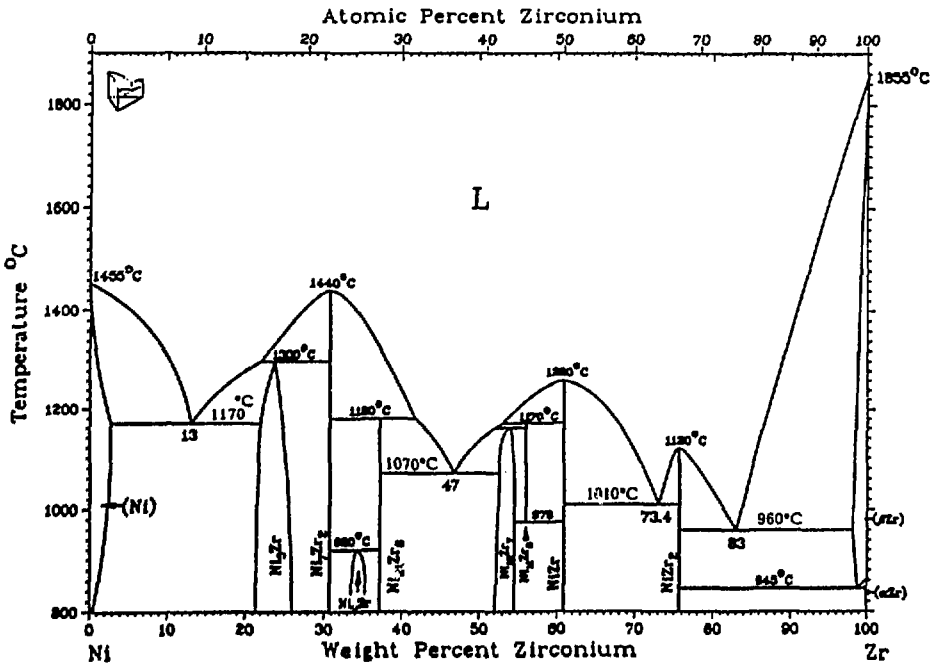
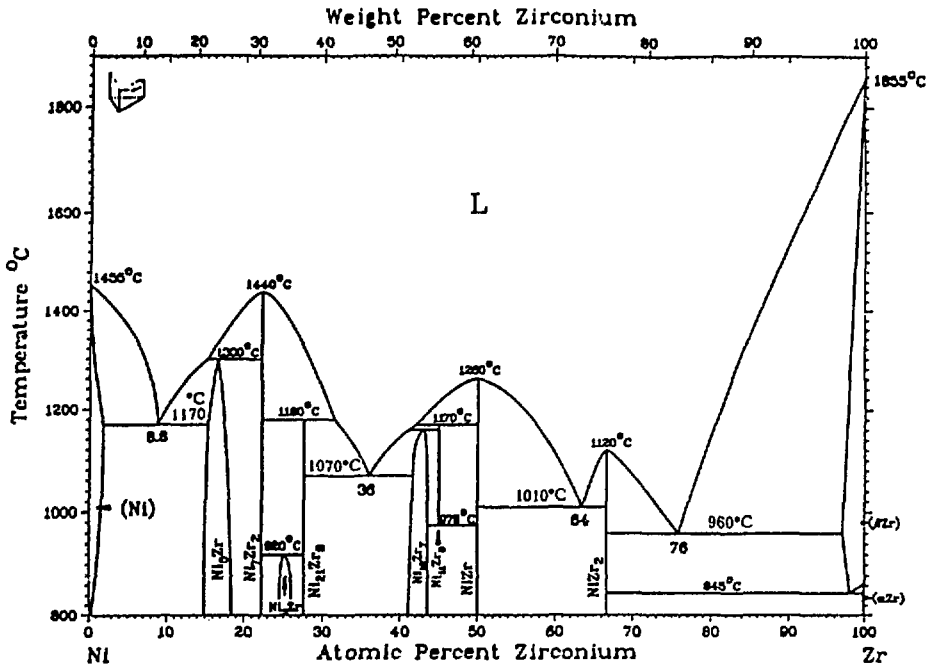
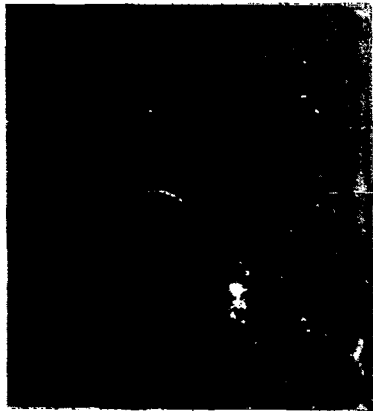
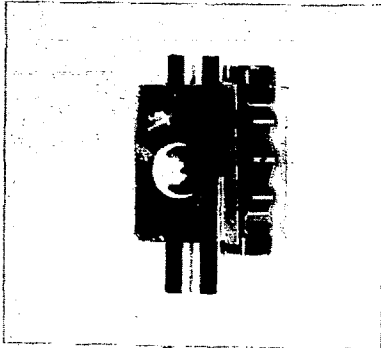


Fig. 1 Binary alloy phase diagrams of the system Ni-Zr(11).

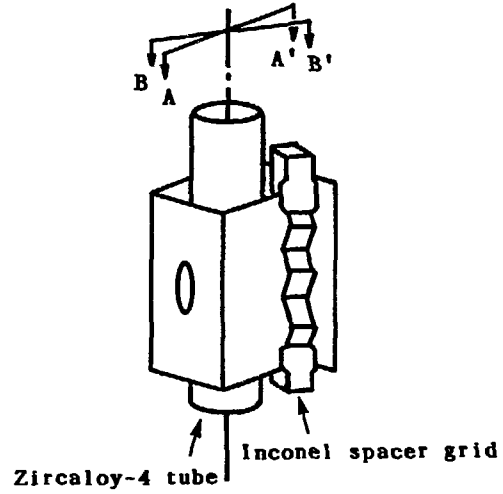




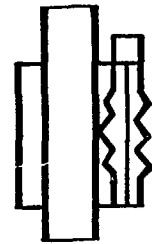
upper view



side view



A-A' cross section



B-B' cross section

Fig. 2 Specimen arrangement.

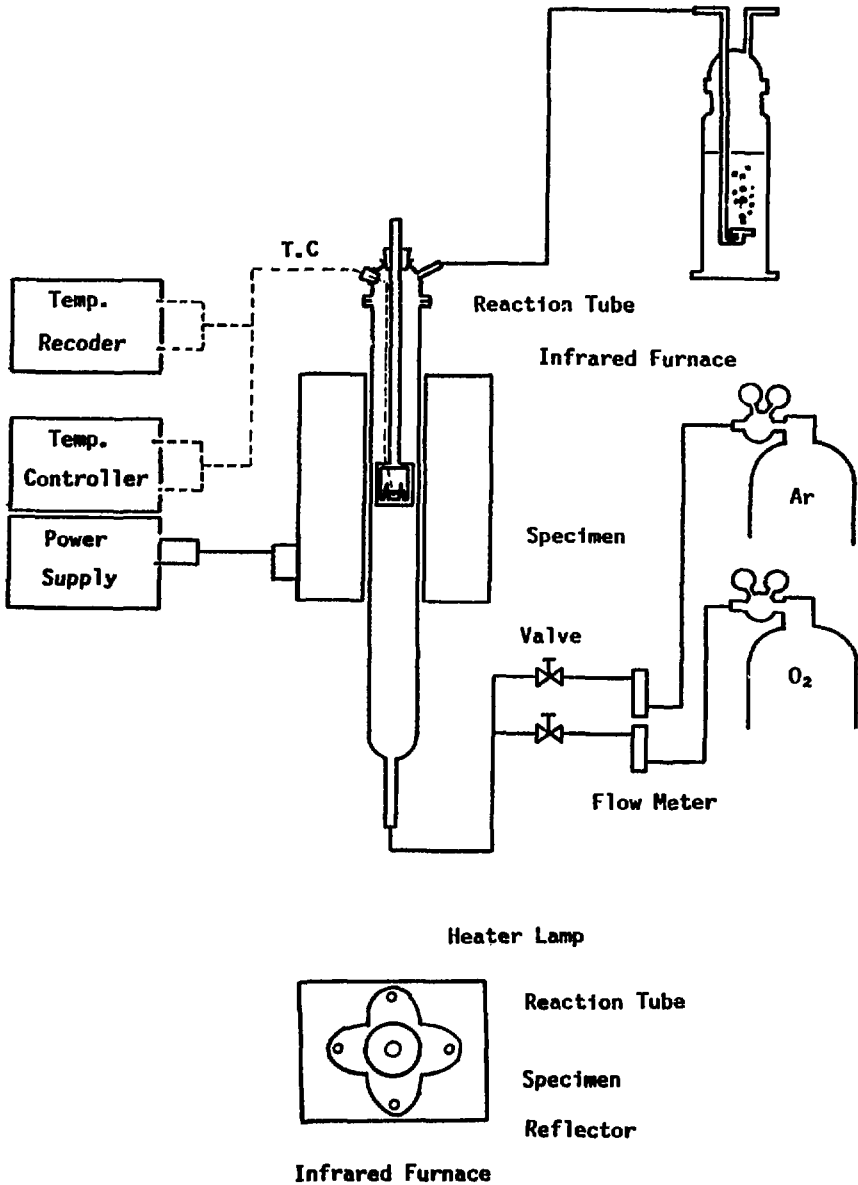


Fig. 3 Schematic illustration of test apparatus.

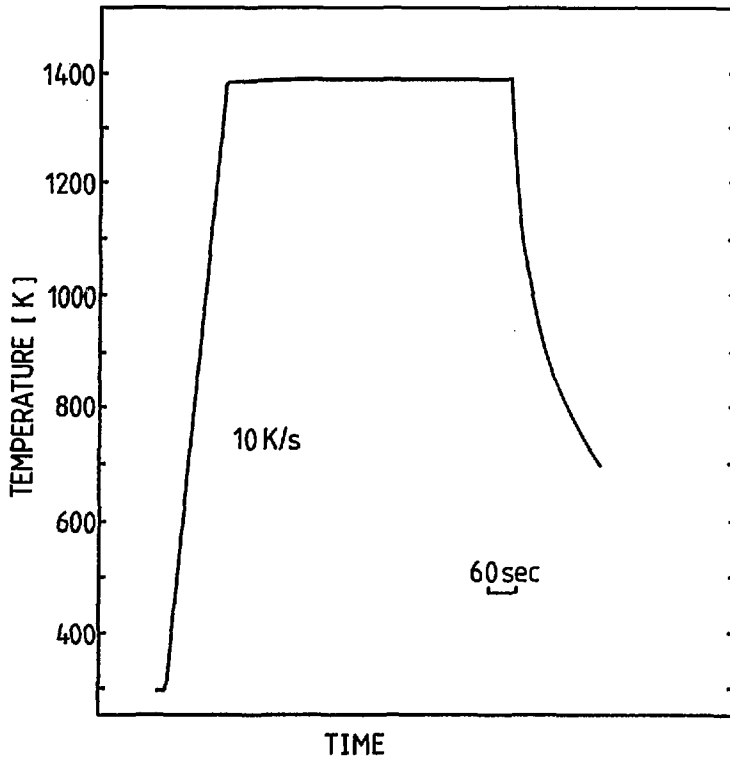


Fig. 4 An example of temperature history.

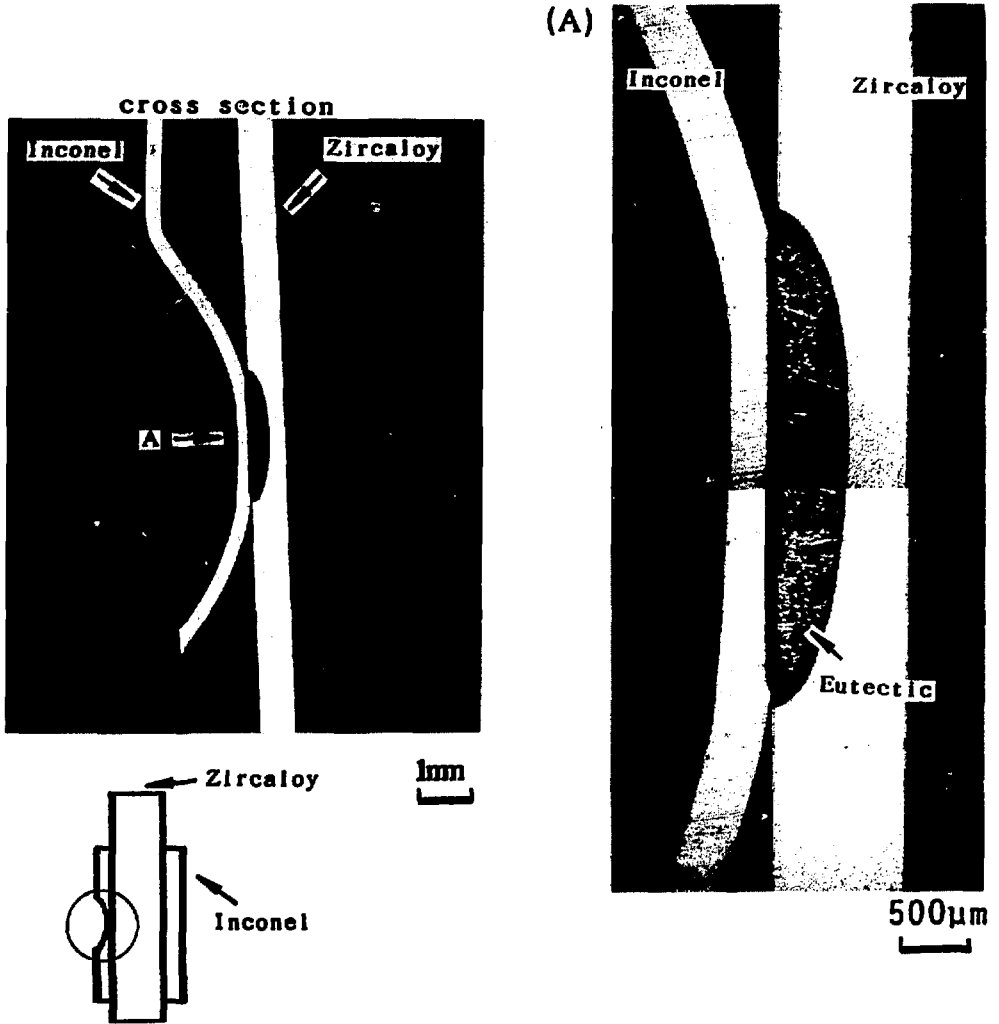


Fig. 5 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1248K for 900s in Ar.

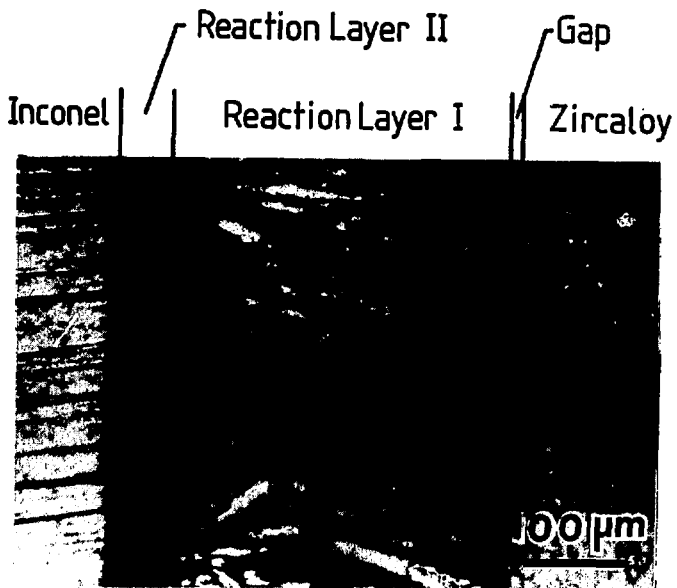


Fig. 6 Microstructure of reaction zone of the sample heated  
at 1248K for 900s in Ar.

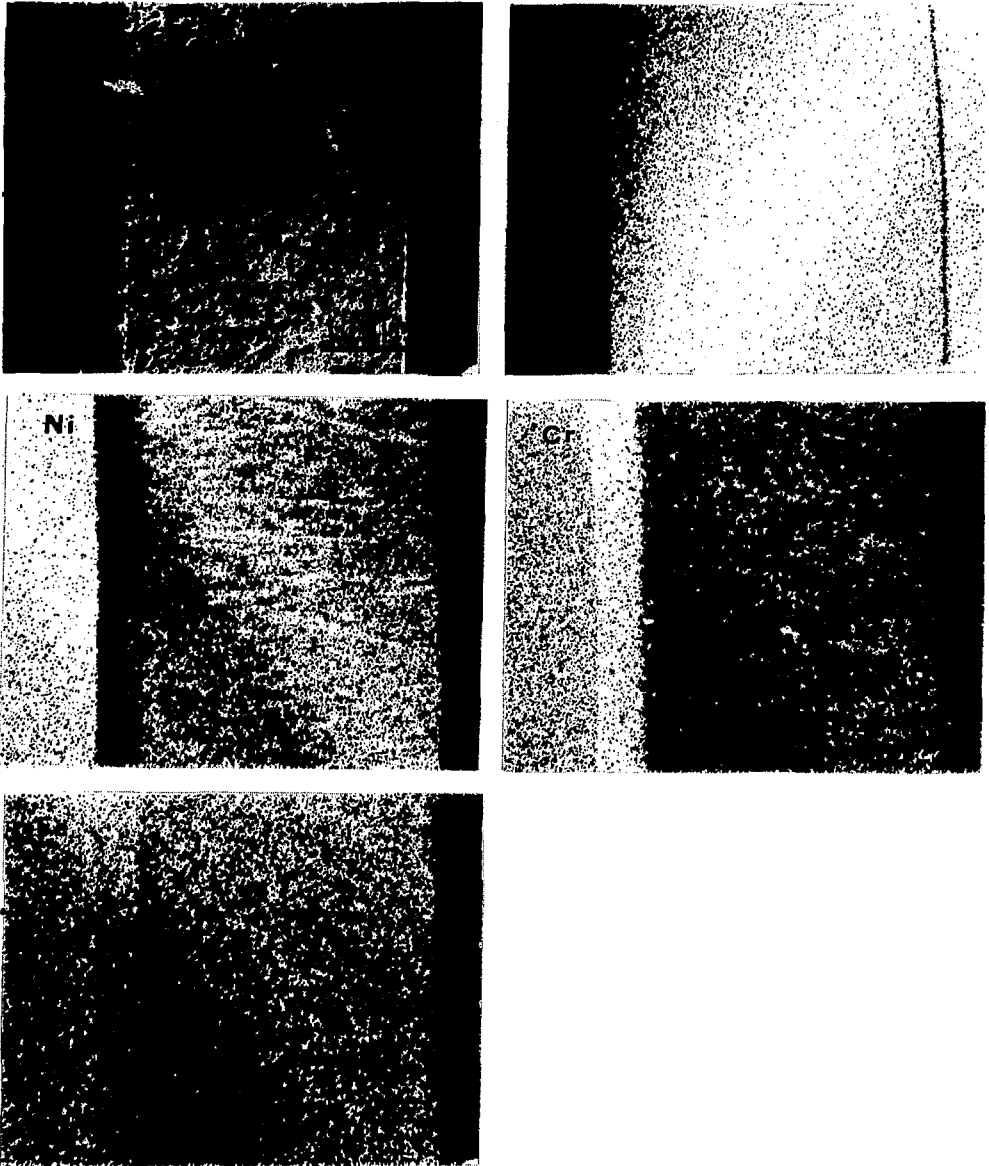


Fig. 7 SEM-photograph and characteristic X-ray images of the specimen heated at 1248K for 900s in Ar.

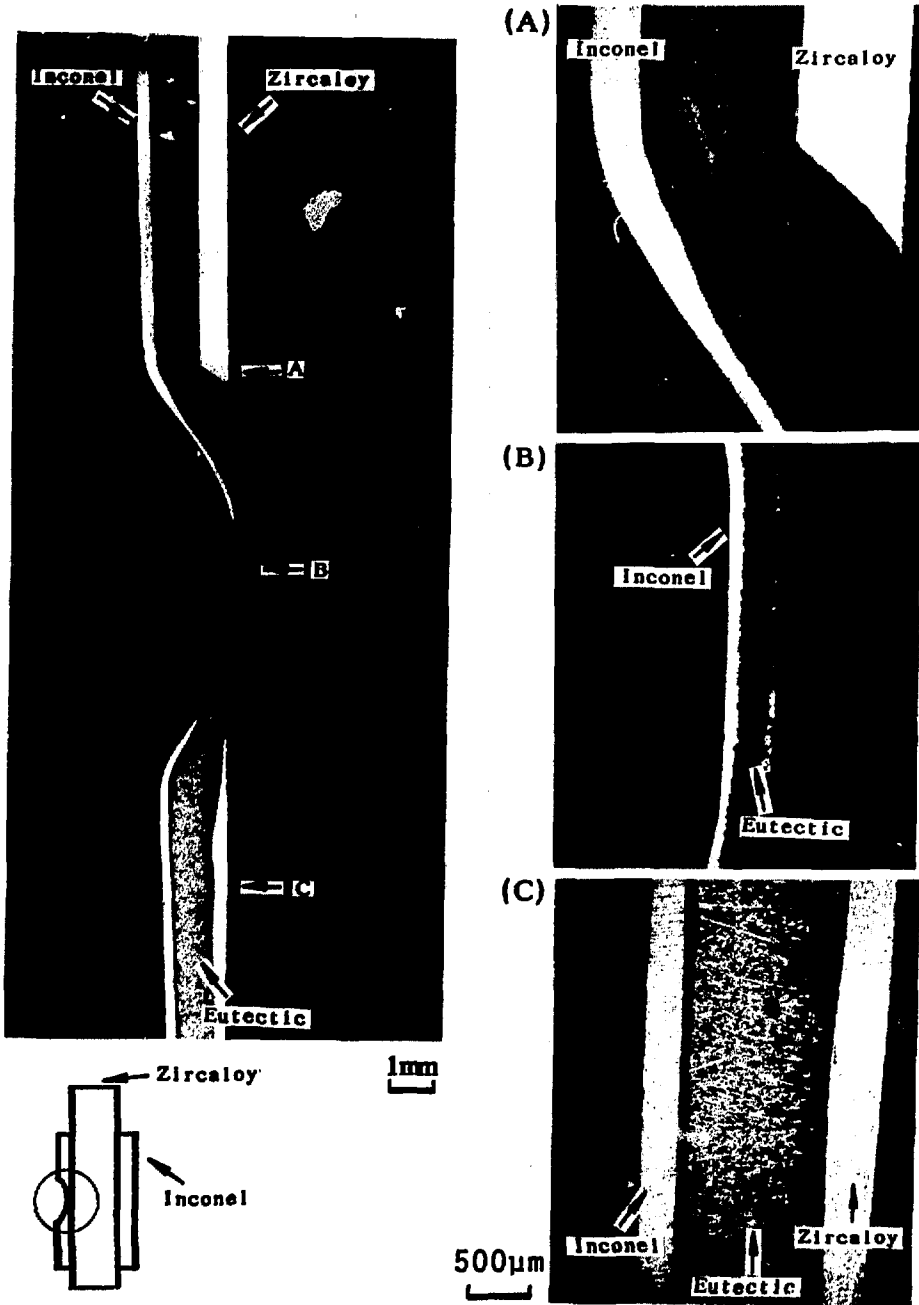
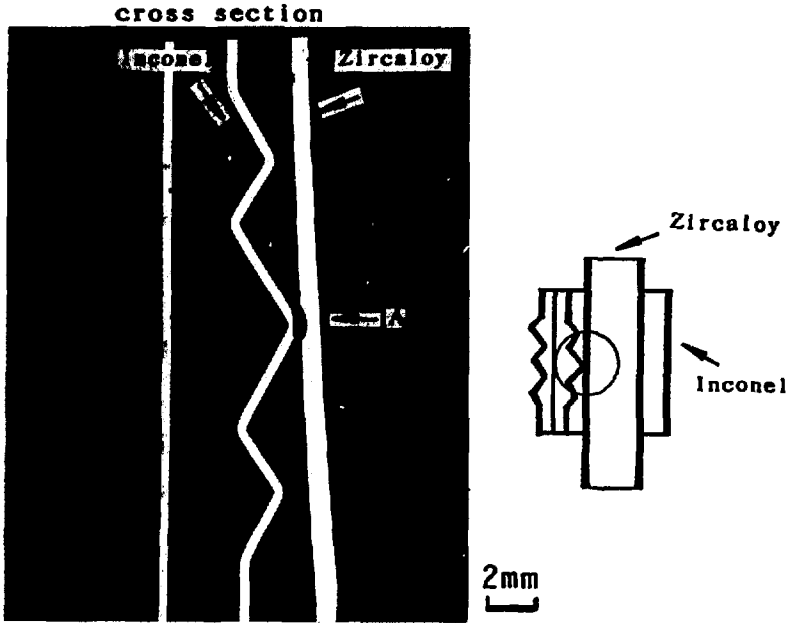


Fig. 8 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1248K for 3600s in Ar.



(A)

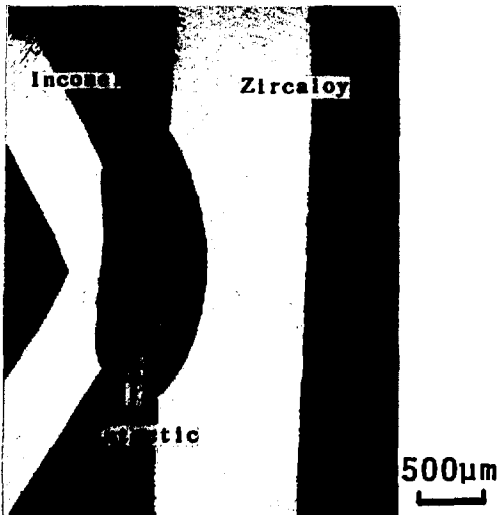
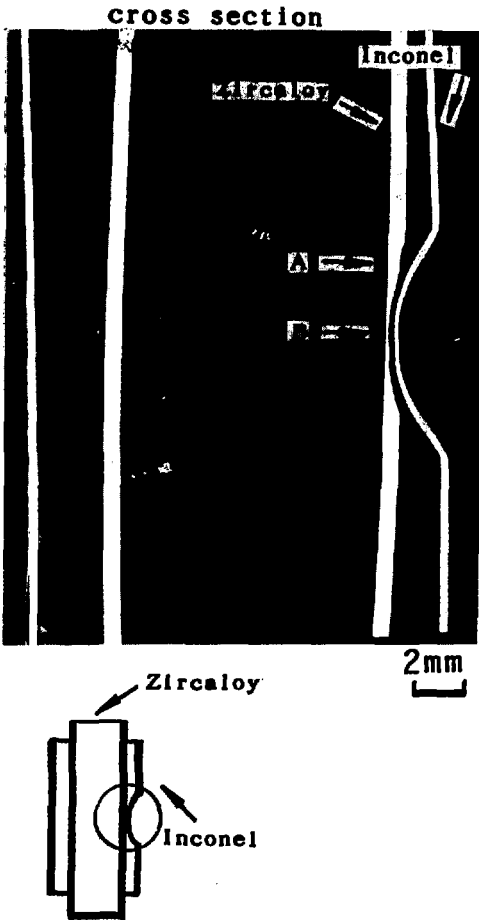
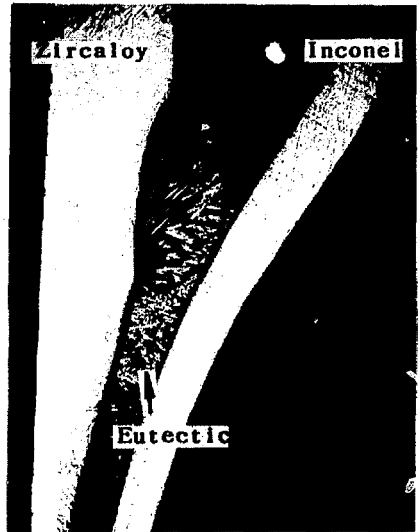


Fig. 9 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1248K for 3600s in Ar.





(A)



(B)

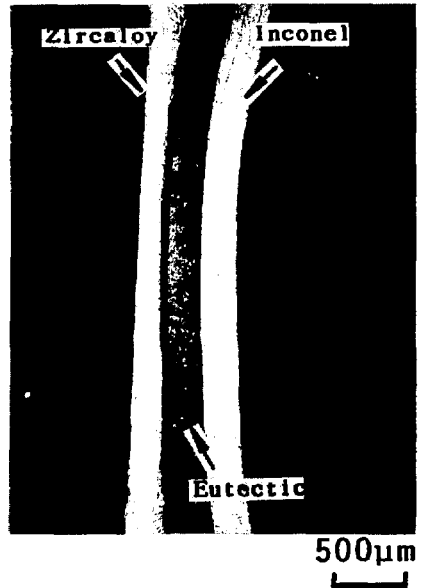


Fig. 10 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1373K for 150s in Ar.

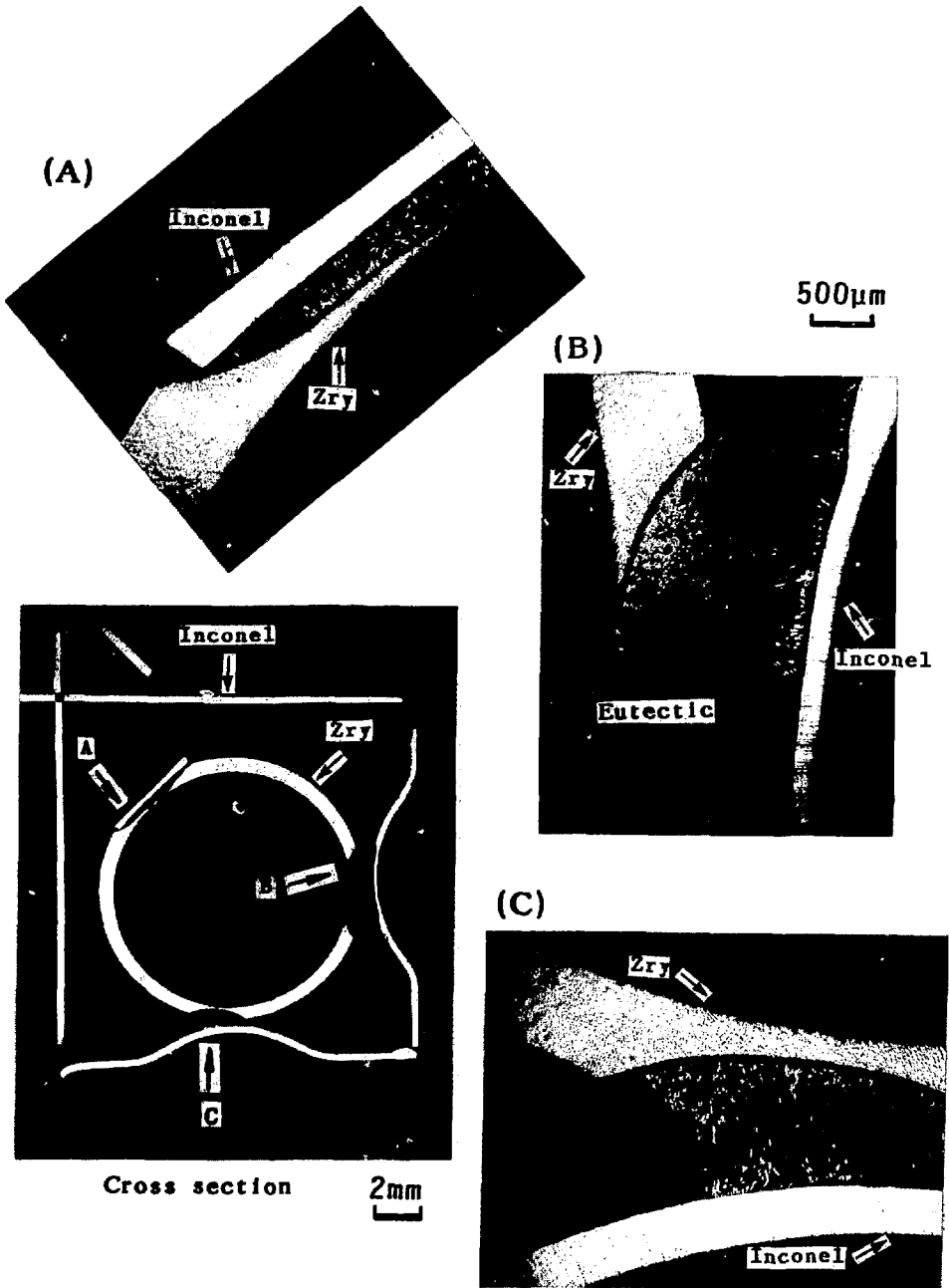


Fig. 11 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1373K for 300s in Ar.

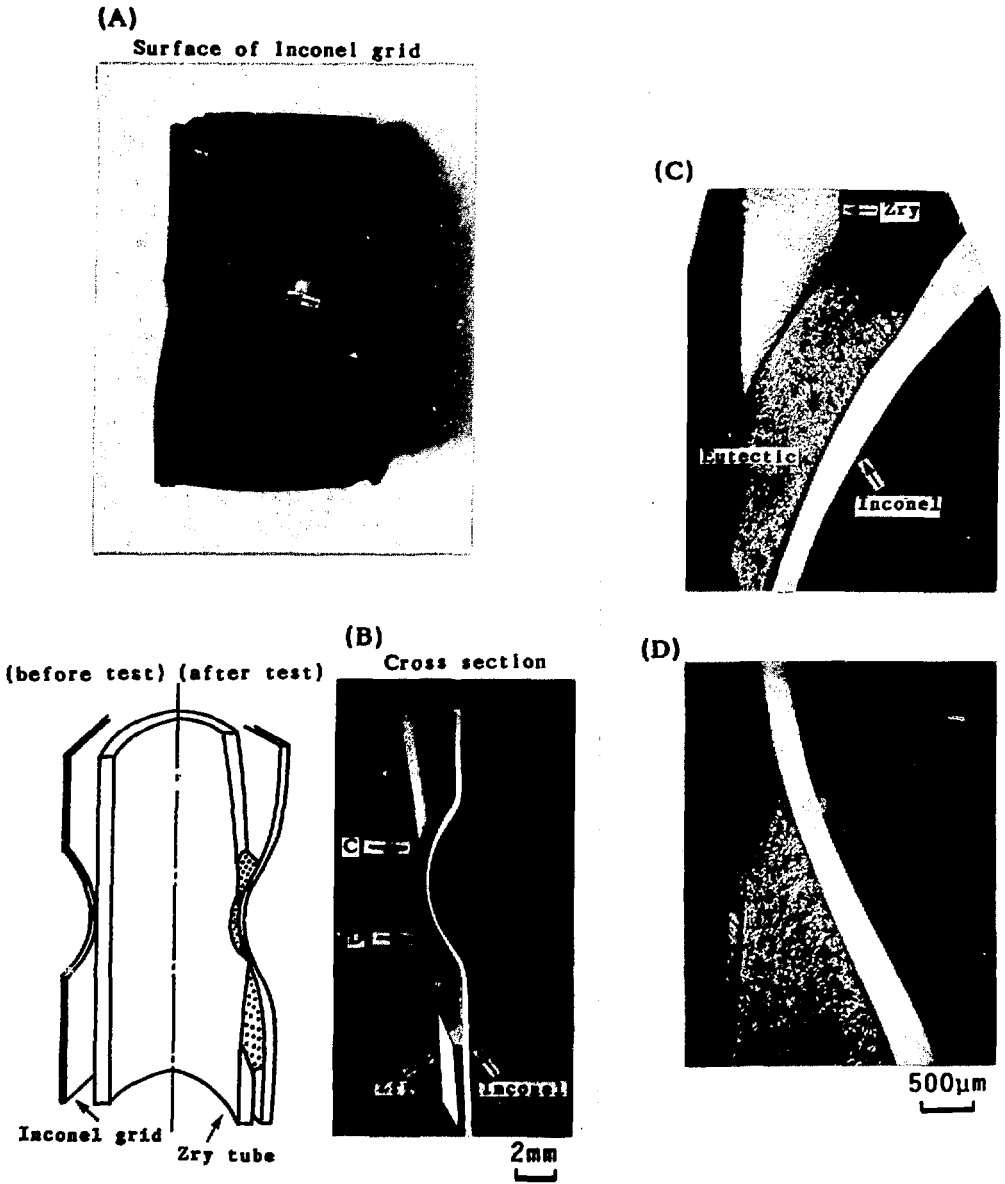
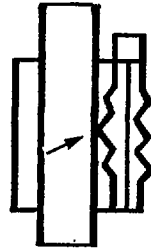
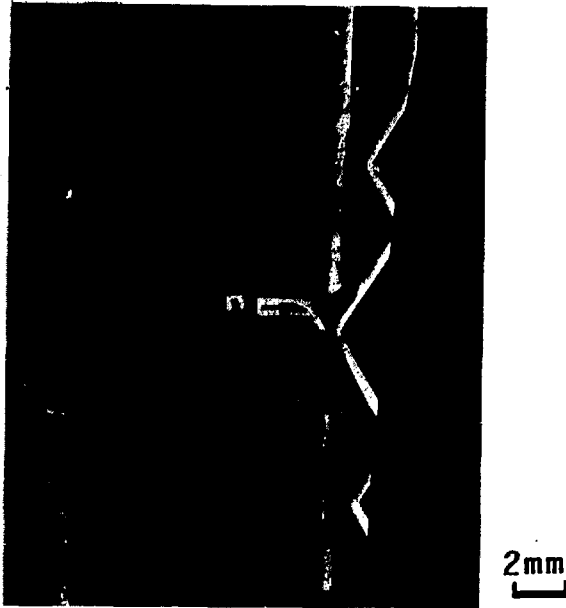
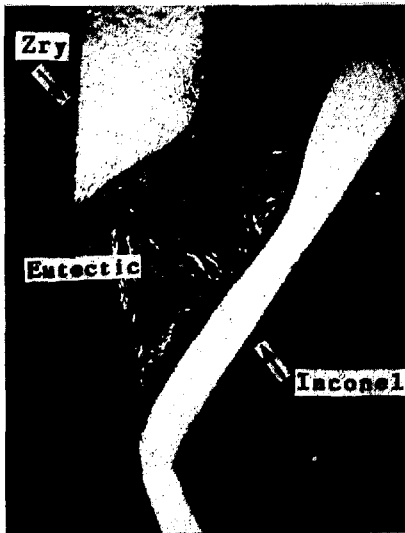


Fig. 12 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1373K for 600s in Ar.



(A)



macro photo of region A

Fig. 13 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1373K for 600s in Ar.

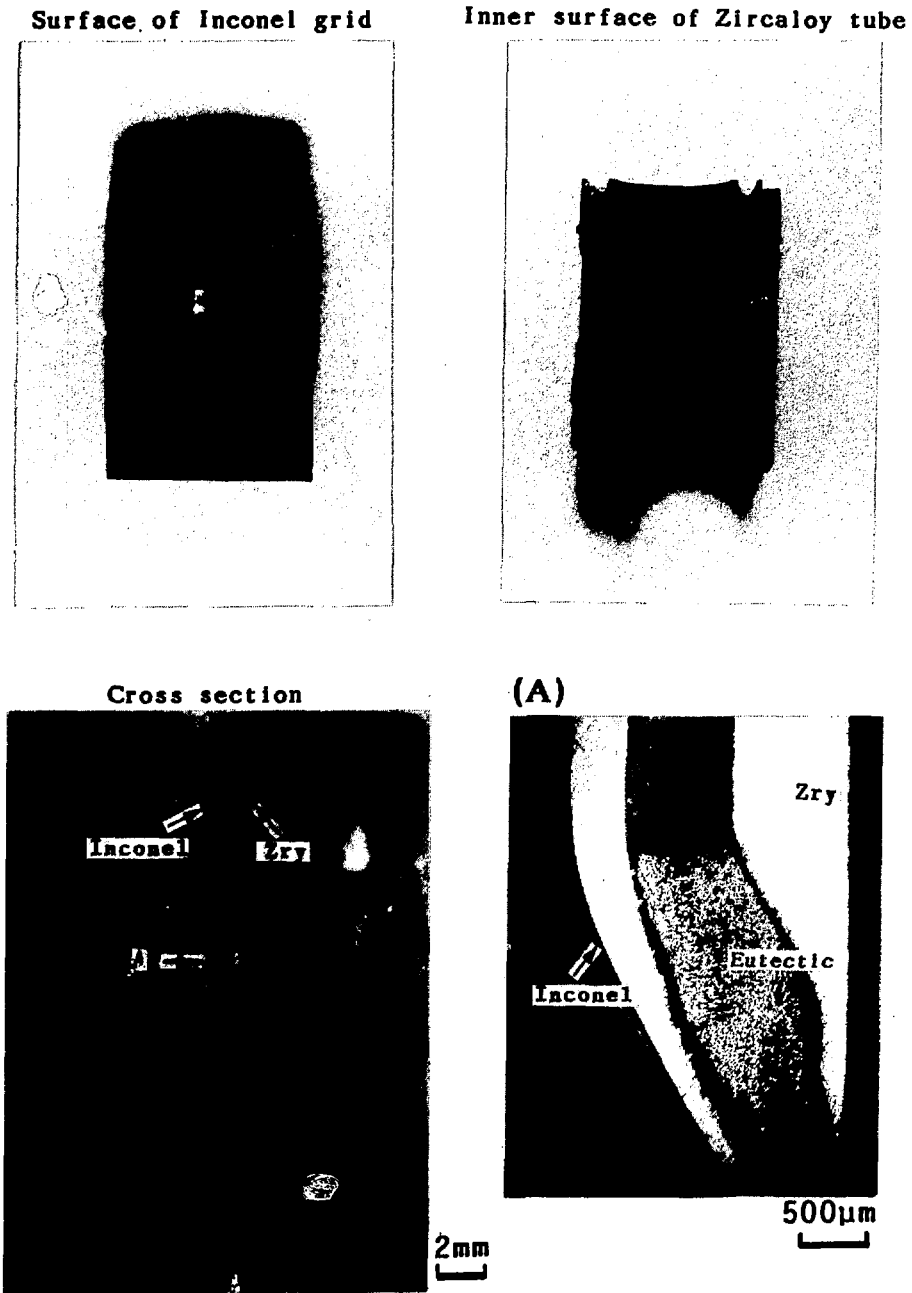
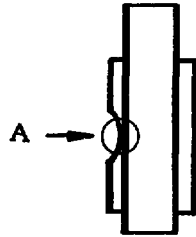
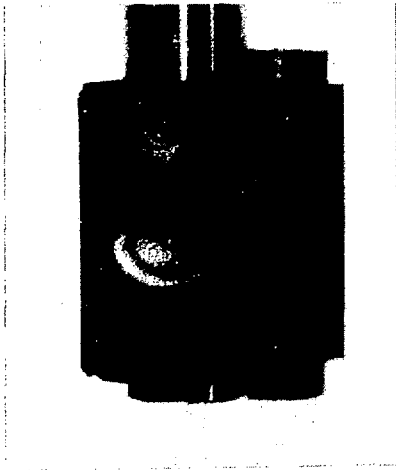


Fig. 14 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1403K for 120s in Ar.

Surface of Inconel grid



(B)



(A)

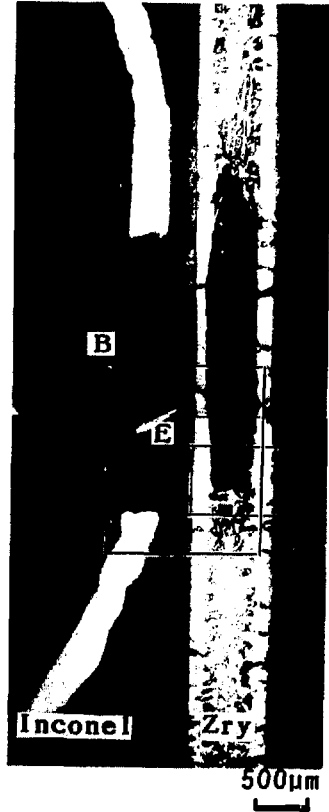


Fig. 15 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1573K for 300s in O<sub>2</sub>.

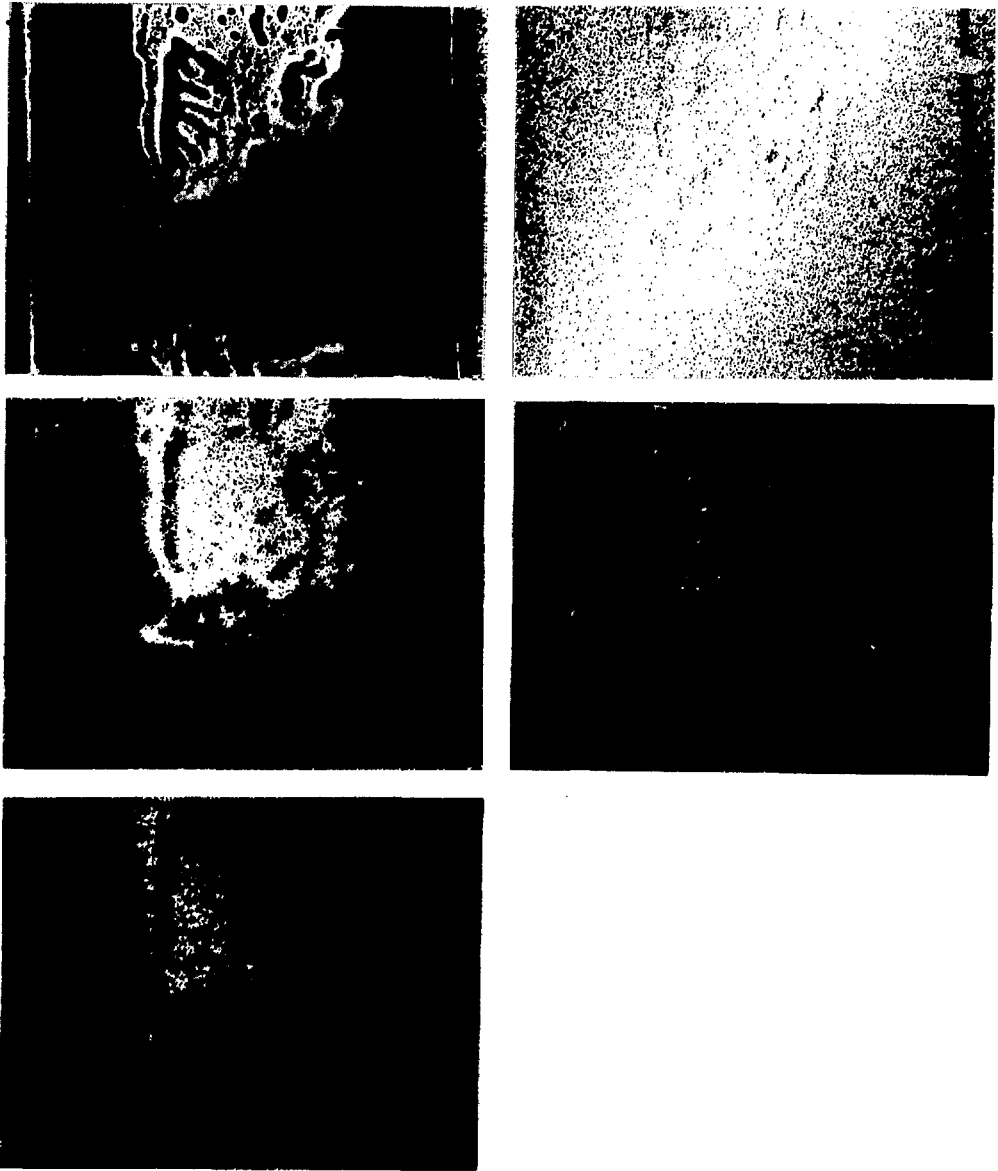


Fig. 16 SEM-photograph and characteristic X-ray images of the specimen heated at 1573K for 300s in O<sub>2</sub>.

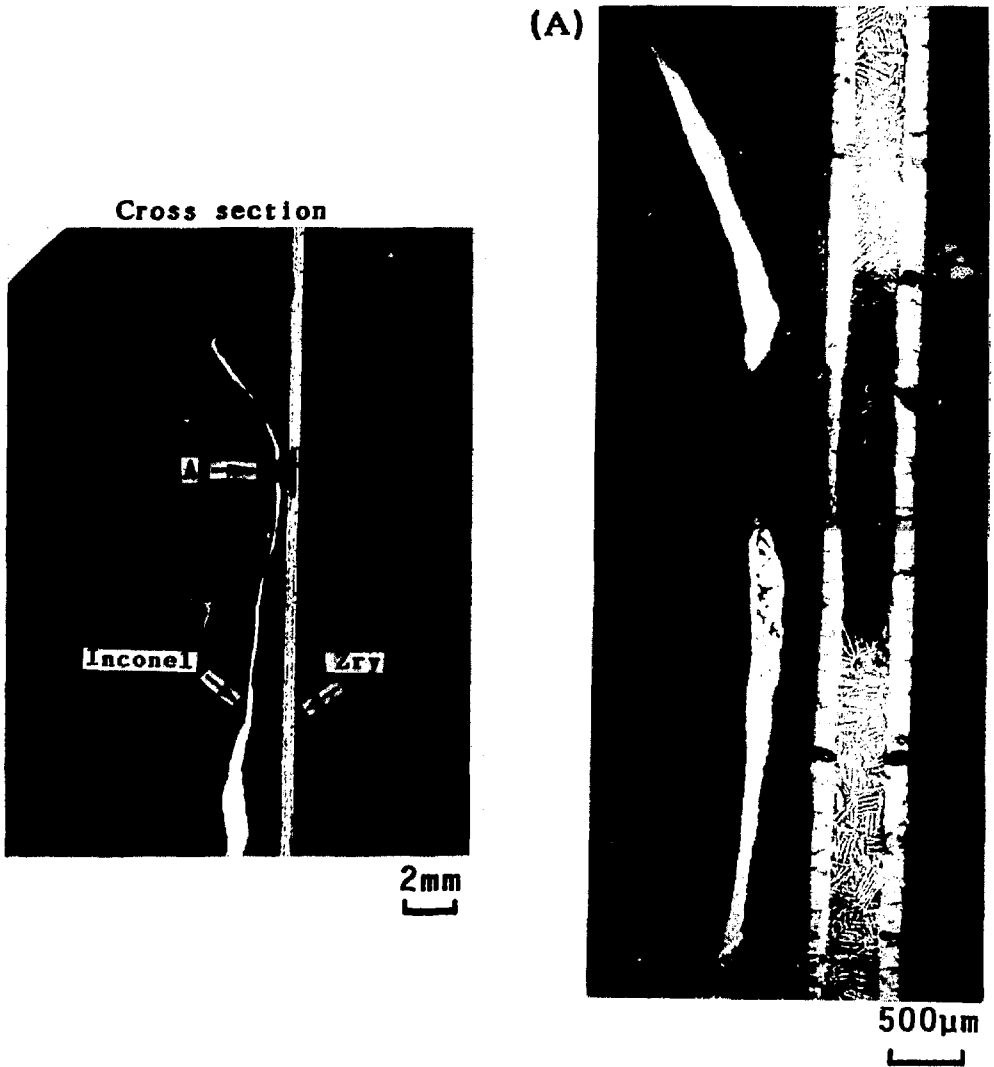


Fig. 17 Interaction between Zircaloy tube and Inconel spacer grid heated at 1623K for 300s in O<sub>2</sub>.



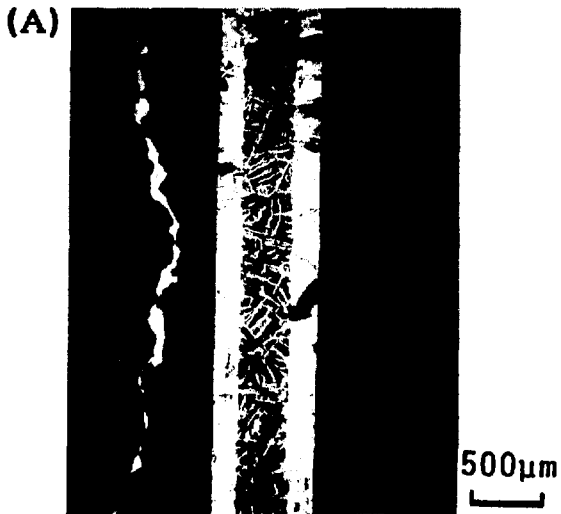
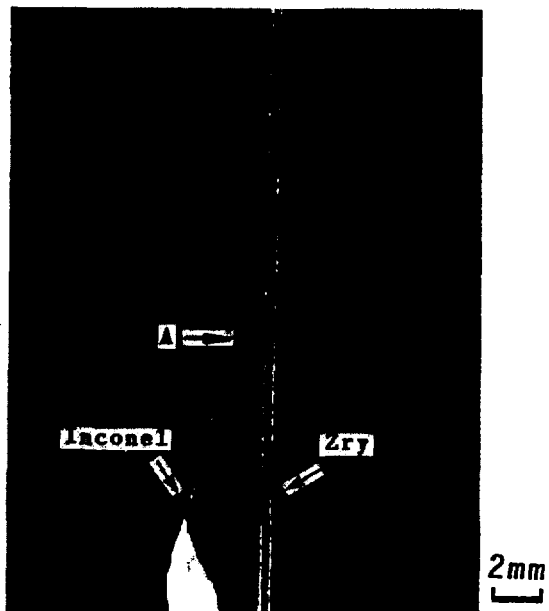
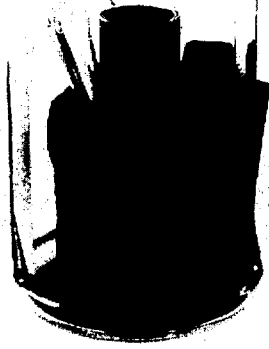


Fig. 18 Structure change of specimen after isothermal heating test at 1623K for 300s in O<sub>2</sub>.

Whole view



Cross section



Microstructures

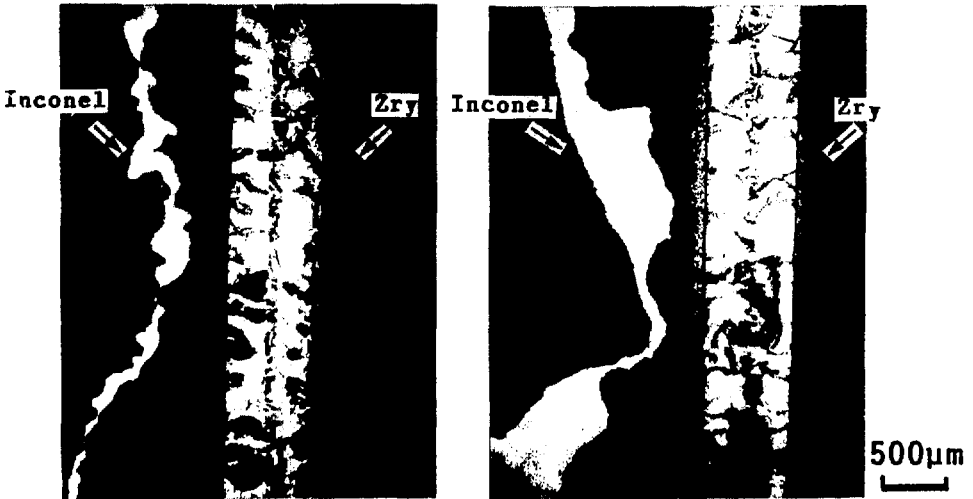


Fig. 19 Structure change of specimen after isothermal heating test at 1673K for 300s in O<sub>2</sub>.

付録 英文抄録

## Outline of the report

short description of the Zircaloy-4/Inconel-718  
interaction experiment

### [ Objective ]

In order to investigate the interaction between Zircaloy cladding tube and Inconel spacer grid under the condition of actual contact in a fuel assembly of PWR, short Zircaloy-4 cladding tube and a piece of Inconel spacer grid was assembled and isothermally annealed at the temperatures ranging from 1248K to 1673K in argon and oxygen. The results are described in this report.

### [ Test Procedure ]

The specimen arrangement is shown in Fig.2. The specimen consists of Zircaloy-4 cladding tube, 40mm in length, and a piece of Inconel-718 spacer grid, which are used in PWRs. Those two materials have three contact points. The specimen was set in the test apparatus shown in Fig.3 and isothermally heated in argon or oxygen. During the test, temperature was measured with Pt/Pt-13%Rh thermocouples spot-welded at four positions near contact points on Zircaloy tube outer surface. Tests in argon were performed at temperatures ranging from 1248K to 1403K for annealing time 150 to 3600s and in oxygen from 1373K to 1673K for 300s. After isothermal annealing test, macro and microstructure change of the specimen was examined with an optical microscope and selected specimens were analyzed by electron probe micro analyzer(EPMA).

## [ Results ]

Tests in argon

<Fig.5> This figure shows a cross section of the sample heated at 1248K for 900s. Eutectic formation is observed at the contact point. It is reported that the reaction was observed at 1223K in the case of good contact condition(ref.9). Therefore, the geometrical difference may not make much difference as to the initiation temperature of the reaction.

<Fig.6> The reaction zone is magnified in this photo. Two layers were formed due to eutectic reaction. The thicker reaction layer I includes needle-like precipitates and the reaction layer II adjacent to Inconel are thin and dark.

<Fig.7> The reaction zone was analyzed by EPMA. In the SE (secondary electron) image, Inconel, the reaction layer II, I, and Zircaloy can be seen from the left hand. According to the characteristic X-ray images, Zr, Ni, Fe, and Cr distribute uniformly in the matrix of the layer I and Ni is rich in precipitates of this phase. Cr is concentrated in the layer II where Ni is poor.

<Fig.8> This figure shows the cross section of the sample heated 1248K for 3600s. A part of Zircaloy, 6mm in axial length, was dissolved due to eutectic formation and thinned Inconel moved to the inner surface of the cladding tube. Zircaloy has higher melting point than Inconel, however it was preferentially dissolved in the present experiments. This phenomenon is probably explained by the lowest eutectic point at 1233K in Fig.1, where Zircaloy content is much higher in the eutectic composition(Zr-83%/Ni-17%). Melt formed due to the reaction flew down and reacted with Zircaloy and Inconel in the lower position (microphoto "C").

<Fig.9> Another cross section of the same sample is shown in this figure. The extent of the reaction is relatively small at this point.

<Fig.10> This figure shows the axial cross section of the sample heated at 1373K for 150s. Zircaloy was dissolved along the curvature of the spacer.

<Fig.11> The radical cross section of the sample heated at 1373K for 500s is shown in this figure. Eutectic formation is observed at three points, although the extent of the reaction at

each point is different. The eutectic reaction is found over the whole width of the Inconel plate at the point "A". At the point "B", Zircaloy was completely dissolved and a penetration was formed. The point "C" had the same geometrical contact condition as "B" at the start of the test. However, the extent of reaction is smaller than that of "B". This indicates that the extent of reaction depends on the contact condition, such as the contact area and stress, even in the same sample.

<Fig.12> These figures are the macro and micro photos of the sample annealed at 1373K for 600s. In the photo "A", a small mark of reaction is found near the contact point on the Inconel surface. Inside of the spacer, however, eutectic reaction is observed in a wide region and Zircaloy tube was melted to form a small oval hole of 4mm in axial length.

<Fig.13> The other cross section of the same sample is shown in this figure. Decrease in Inconel thickness due to reaction is relatively small and the movement of remained Inconel plate toward Zircaloy tube is seen. The reaction area might increase with this movement and liquid formation.

<Fig.14> The appearance of tested specimen heated at 1403K for 120s and the cross section of it is shown in this figure. Also in this test, a trace of melting is found on Inconel outer surface. On the other hand, an elliptical melt can be apparently seen on the Zircaloy inner surface.

### Tests in oxygen

In oxygen no eutectic reaction was observed at temperatures below 1437K.

<Fig.15> This figure shows the sample heated at 1573K for 300s, a trace of the reaction can be found on Inconel outer surface at the contact point. The thickness of Zircaloy tube is axially constant and both surfaces of tube are covered with oxide scale. The photo (A) is the magnified photo of the region near the contact point. The microstructure inside the oxide scale in this region is obviously different from other regions.

<Fig.16> The selected region of specimen surrounded by a square in Fig.15(A) was analyzed by an EPMA. The SE image and the characteristic images are shown in this figure. The phases in the SE image are outside  $ZrO_2$  scale, intermediate layer of  $\alpha$ -Zr(O), and the central phase of transformed- $\beta$  with  $\alpha$ -incursion.

As can be seen in the characteristic X-ray images, this central phase includes Ni, Fe, and a little Cr. Those elements diffused into Zircaloy when Inconel reacted with Zircaloy in the early stage of the test. It is considered that eutectic reaction between Zry and Inconel ceased with formation of enough thickness of oxide layer which could protect the metals from eutectic reaction.

<Fig.17> This figure shows the cross section of the sample heated at 1623k for 300s. Since the test temperature probably exceeded the melting point of Inconel, the spacer grid lost its original shape. Also in this case, the microstructure indicates a trace of the reaction.

<Fig.18> Another cross section of the same sample is shown in this figure. However, no trace of the reaction can be found in this cross section. In oxidizing atmosphere, the possibility of eutectic reaction must depend on the factors such as the mechanical contact condition, the oxygen potential in atmosphere and the temperature.

<Fig.19> This sample was heated at 1673K for 300s. Inconel spacer grid lost its shape due to oxidation and melting. No eutectic reaction is observed in the microphotos.

The result of this study suggests eutectic reaction between Zircaloy cladding tube and Inconel spacer grid is limited in oxidizing atmosphere. However, a wide range of in-reactor condition should be taken into account for severe accident analysis, so that the possibility of eutectic reaction between Zry cladding tube and Inconel spacer grid must not be neglected, since it may occur under a steam-starved (low oxygen potential) condition. At very high temperatures, there is a possibility that molten Inconel flows down and spreads on the cladding tube and reacts with it.

## [ Conclusions ]

In order to investigate the interaction between fuel cladding tube and spacer grid of the pressurized water reactor during a severe accident, isothermal reaction tests were performed in the temperature range from 1248 to 1673K. The following are the obtained conclusions.

Tests in argon

1. Eutectic reaction took place at contact points between Zircaloy cladding and Inconel spacer grid at 1248K. Rapid reaction was observed at higher temperatures. For example, in the test at 1373K for 300s, the whole thickness of Zircaloy tube, 0.62mm, reacted with Inconel in the vicinity of a contact point.
2. The extent of the reaction is considered to depend on the contact condition, such as the contact area and stress.
3. Zircaloy which has higher melting point than Inconel was preferentially dissolved due to eutectic reaction.

Tests in oxygen

1. No eutectic formation was observed at temperatures below 1473K.
2. The trace of interaction was found at contact points of the samples heated at 1573 and 1623K. However, decrease in Zircaloy thickness was not measured. Eutectic reaction is considered to have initiated in the early stage of the test but have stopped in a short time due to the oxidation of the metal surface.
3. The possibility of eutectic reaction between Zircaloy cladding and Inconel spacer grid seems to be quite limited when sufficient oxygen is supplied.