

Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом»  
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ  
АКЦИОНЕРНОЕ ОБЩЕСТВО «ВЫСОКОТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ НАУЧНО-  
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ НЕОРГАНИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ ИМЕНИ  
АКАДЕМИКА А.А. БОЧВАРА» (АО «ВНИИНМ»)

На правах рукописи

Сабуров Николай Сергеевич

**СТОЙКОСТЬ К ЗАМЕДЛЕННОМУ ГИДРИДНОМУ РАСТРЕСКИВАНИЮ  
ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ ИЗ СПЛАВОВ ЦИРКОНИЯ**

2.6.1 - Металловедение и термическая обработка металлов и сплавов

Диссертация на соискание учёной степени кандидата технических наук

Научный руководитель:

доктор технических наук, главный научный сотрудник АО «ВНИИНМ»

Маркелов Владимир Андреевич

## ОГЛАВЛЕНИЕ

Список сокращений и условных наименований .....	4
Общая характеристика работы.....	5
Глава 1. Аналитический обзор литературы .....	13
1.1 Циркониевые сплавы для оболочек твэлов.....	13
1.2 Водород в сплавах циркония.....	14
1.2.1 Предел растворимости и диффузионная подвижность .....	14
1.2.2 Гидриды, их структура и свойства .....	16
1.2.3 Влияние водорода и гидридов на свойства сплавов .....	18
1.3 Замедленное гидридное растрескивание.....	20
1.3.1 Механизм и условия проявления ЗГР .....	20
1.3.2 Основные параметры ЗГР и модельные представления для их прогноза .....	22
1.3.3 Влияние различных факторов на основные параметры ЗГР.....	25
1.3.4 Взаимосвязь межбороздчатого расстояния в изломах и скорости роста трещины при ЗГР.....	41
1.4 Примеры ЗГР в циркониевых конструктивных элементах .....	44
1.5 Испытания на ЗГР в лабораторных условиях.....	47
1.6 Выводы по главе 1 .....	54
Глава 2. Материалы и методы исследований .....	56
2.1 Исследуемые материалы и их характеристики.....	56
2.2 Определение предела прочности, микроструктуры и текстуры труб .....	59
2.3 Методика наводороживания, контроля гидридов и содержания водорода.....	61
2.4 Образец, способ нагружения и схема испытания на ЗГР .....	67
2.5 Фрактография.....	71
2.6 Выводы по главе 2 .....	73
Глава 3. Разработка нового метода испытаний на ЗГР для оболочек твэлов .....	74
3.1 Метод «постоянного перемещения» и его возможности.....	74
3.2 Обоснование применимости для радиальной трещины в оболочке параметров ЗГР, полученных на образцах с осевой трещиной.....	83
3.3 Выводы по главе 3 .....	88
Глава 4. Результаты испытаний на ЗГР оболочек твэлов из сплавов циркония разных систем легирования .....	89
4.1 Основные параметры ЗГР и их температурные зависимости .....	89
4.2 Зависимость скорости ЗГР от прочности .....	93

4.3 Выводы по главе 4 .....	96
Глава 5. Фрактографические особенности ЗГР оболочек твэлов из сплавов циркония.....	97
5.1 Бороздчатый рельеф поверхности трещин ЗГР в оболочках твэлов .....	97
5.2 Выполнение условий линейно-упругой механики разрушения по состоянию плоской деформации при испытаниях оболочек на ЗГР .....	101
5.3 Выводы по главе 5 .....	104
Глава 6. Прогнозная оценка ЗГР оболочек твэлов из сплавов циркония при эксплуатации и сухом хранении отработавших ТВС.....	105
6.1 Вероятность ЗГР оболочек твэлов при эксплуатации в реакторе.....	105
6.2 Вероятность ЗГР оболочек твэлов в условиях сухого хранения .....	110
6.3 Выводы по главе 6 .....	113
Основные выводы.....	114
Список использованных источников.....	116
ПРИЛОЖЕНИЯ .....	132

## Список сокращений и условных наименований

АЭС – атомная электрическая станция;

АЗ – активная зона;

АО «ТВЭЛ» - Топливная компания Росатома

ВВЭР – водо-водяной энергетический реактор (корпусного типа);

ЗГР – замедленное гидридное растрескивание;

МАГАТЭ – международное агентство по атомной энергии;

НИР – научно-исследовательская работа

РБМК – реактор большой мощности канальный;

ТВС – тепловыделяющая сборка;

ТВЭЛ – тепловыделяющий элемент;

ТУ – технические условия

BWR – Boiling Water Reactor (реактор с кипящей водой корпусного типа);

PCI – Pellet Cladding Interaction (взаимодействие таблетки и оболочки);

PWR – Pressurized Water Reactor (реактор с водой под давлением корпусного типа);

CANDU – CANada Deuterium Uranium (реактор канального типа);

ANTIA - Международная Академия Передовых Ядерных Технологий

## Общая характеристика работы

### Актуальность

Оболочки твэлов и другие конструктивные элементы тепловыделяющих сборок (ТВС) из сплавов циркония в процессе работы в активной зоне (АЗ) водоохлаждаемых реакторов подвержены коррозии и наводороживанию [1]. При достижении определённой концентрации водорода в сплаве выделяются гидриды циркония, в результате чего он становится чувствительным к зависящему от времени разрушению по механизму замедленного гидридного растрескивания (ЗГР) [2,3]. Впервые при эксплуатации такое растрескивание с образованием сквозных трещин наблюдали для труб давления в канальных реакторах CANDU [4,5] и РБМК [6,7]. С механизмом ЗГР связывают и растрескивание топливных оболочек из сплава Zircaloy в кипящих водяных реакторах (BWR) [8-14]. Наиболее показательно растрескивание оболочек BWR происходило с образованием сквозных длинных осевых трещин [8-13]. В результате чего в реакторной воде увеличивается содержание урана и продуктов деления топлива, приводя к нарушению радиационной обстановки на АЭС [8-10]. Случаев ЗГР оболочек твэлов при эксплуатации в реакторах с водой под давлением типа PWR и ВВЭР по опубликованным источникам не известно. Однако вероятность ЗГР оболочек в этих реакторах, близких между собой по концепции и наиболее развиваемых в мире, не исключается. В связи с этим, ЗГР необходимо принимать во внимание в техническом проектировании твэлов для обоснования работоспособности материала оболочки при эксплуатации. Рассматривается ЗГР и как потенциальный механизм деградации оболочек твэлов при сухом хранении отработавших ТВС [15-17].

Определяющими характеристиками для обоснования стойкости оболочек твэлов к ЗГР являются основные параметры этого механизма разрушения [18]:

- $K_{I\text{н}}$  - пороговый коэффициент интенсивности напряжений в вершине трещины, с превышением которого трещина начинает расти;
- $V_{\text{ЗГР}}$  - скорость стабильного роста трещины (при сопутствующем увеличении значений  $K_I$  до критической величины  $K_{I\text{к}}$ ).

Важное значение имеет, также, температурная зависимость скорости роста трещины. По этой зависимости определяется температура, называемая верхним температурным пределом ( $T_{\text{ВТП}}$ ), выше которой циркониевый материал проявляет иммунитет к ЗГР [19,20].

В качестве материала оболочек твэлов используются сплавы циркония разных систем легирования [21]. Наиболее широкое применение нашли сплавы систем Zr-Nb (Э110 и М5), Zr-Sn-Fe (Zircaloy) и Zr-Nb-Sn-Fe (Э635 и ZIRLO). Помимо различий в легировании, оболочки из сплавов этих систем различаются составом твёрдого раствора, типом

выделений второй фазы и применяются для твэлов в различном структурном состоянии по степени рекристаллизации. Легирование и микроструктура контролируют прочность и вязкость разрушения циркониевого материала, которые влияют на сопротивление и кинетику ЗГР.

На момент начала настоящей работы в литературе встречались немногочисленные данные по характеристикам  $K_{I\text{H}}$  и  $V_{\text{ЗГР}}$  для оболочек твэлов из сплавов Zircaloy [22-26]. Экспериментальные данные для оболочек из сплавов циркония других систем легирования отсутствовали. Связано это, в том числе, с методической сложностью испытаний на ЗГР тонкостенных трубчатых образцов, особенно, при определении  $K_{I\text{H}}$ . Поэтому, настоящая работа, посвященная изучению основных параметров ЗГР и их температурных зависимостей для оболочек твэлов из сплавов циркония разных систем легирования, и развитию метода испытаний на ЗГР является актуальной.

Актуальность диссертации подтверждается её выполнением по научным договорам АО «ВНИИНМ», финансируемых АО «ТВЭЛ» в рамках корпоративных Программ по циркониевым материалам и технологиям для атомной энергетики (2009-2026 г.г.). Часть экспериментов выполнена по соглашению с МАГАТЭ в рамках международного проекта координированных исследований «Оценка условий для вызванной водородом деградации циркониевых сплавов при эксплуатации и хранении топлива» (2011-2015 г.г.).

### **Цель работы**

Определение основных параметров замедленного гидридного растрескивания ( $K_{I\text{H}}$  и  $V_{\text{ЗГР}}$ ) и их температурных зависимостей для оболочек твэлов из сплавов циркония разных систем легирования с оценкой стойкости сплавов к данному механизму разрушения.

### **Решаемые задачи:**

1) Развитие метода испытаний по определению параметров ЗГР в оболочках твэлов для обеспечения достоверных и воспроизводимых результатов с наименьшими затратами времени и ресурсов.

2) Выявление различий в  $K_{I\text{H}}$  и  $V_{\text{ЗГР}}$  и их температурных зависимостях для оболочек твэлов из сплавов циркония разных систем легирования для сопоставления стойкости к ЗГР исследуемых сплавов.

3) Установление фрактографических особенностей рельефа гидридной трещины во взаимосвязи со стойкостью сплава к ЗГР.

4) Прогнозирование проявления ЗГР в циркониевых оболочках твэлов при эксплуатации в реакторах ВВЭР/PWR и сухом хранении отработавших ТВС

#### **Научная новизна:**

1. Впервые разработан и применён для испытаний на ЗГР оболочек твэлов метод определения  $K_{Ih}$  при зафиксированном раскрытии трещины в образце. Метод позволяет определить и скорость ЗГР с установлением в одном эксперименте, что она постоянна в широком диапазоне значений  $K_I$  и резко снижается вблизи  $K_{Ih}$ , при этом критический размер гидроксида в вершине трещины становится максимальным.

2. Впервые для оболочек твэлов в сопоставимых металлургических состояниях из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, представляющих разные системы легирования циркония, по единой методике получены значения основных параметров ЗГР ( $K_{Ih}$  и  $V_{ЗГР}$ ) и их температурные зависимости, имеющие подобный вид, но различающиеся количественно. Стойкость к ЗГР сплавов в приведенной последовательности возрастает с очевидным превосходством последнего. Сплав Э110опт имеет наибольший  $K_{Ih}$ , наименьшую  $V_{ЗГР}$  и меньшую её зависимость от температуры, а также низкую предельную температуру ( $T_{ВТП}$ ), выше которой ЗГР не проявляется. Облучение увеличивает преимущество в стойкости к ЗГР сплава Э110опт за счёт его меньшего радиационного упрочнения.

3. Впервые показано, что чем больше расстояние между вязкими перемычками (бороздками) на поверхности излома трещины ЗГР, определяемое критическим размером треснувшего гидроксида в вершине её прерывистого роста, тем более высокой стойкостью к ЗГР обладает сплав.

#### **Практическая значимость:**

1. Разработанный метод испытаний на ЗГР внедрён в практику АО «ВНИИНМ» и распространён среди стран-участниц международного проекта координированных исследований МАГАТЭ.

2. Полученные экспериментальные данные по основным параметрам ЗГР ( $K_{Ih}$  и  $V_{ЗГР}$ ) и их температурным зависимостям для оболочек твэлов из сплавов циркония будут использованы в коде СТАРТАП для построения модели роста трещины ЗГР в условиях сухого хранения отработавших ТВС.

3. Данные по стойкости к ЗГР циркониевых сплавов разных систем легирования следует учитывать при разработке и обосновании новых модификаций сплавов с высоким сопротивлением такому виду разрушения.

4. Результаты диссертационной работы использованы в учебном курсе семинаров для специалистов атомной энергетики, проводимых Международной Академией Передовых Ядерных Технологий (ANTIA).

#### **Положения, выносимые на защиту:**

- Метод испытаний на ЗГР, обеспечивающий получение достоверных и воспроизводимых результатов по параметрам  $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$ , с наименьшими затратами времени и ресурсов.

- Результаты определения  $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$  с построением их температурных зависимостей для оболочек ТВЭЛов из сплавов циркония разных систем легирования и оценкой стойкости к ЗГР этих сплавов.

- Результаты фрактографических исследований с выявленной взаимосвязью особенностей рельефа гидридной трещины и стойкости сплава к ЗГР.

- Прогнозная оценка выполнения условий для проявления ЗГР в оболочках ТВЭЛов при эксплуатации в ВВЭР/PWR и в условиях сухого хранения отработавших ТВС.

**Достоверность результатов** обеспечивается: 1) представительностью объема экспериментов, выполненных с применением комплекса современных методов исследований, на поверенном высокоточном оборудовании, с использованием метрологически аттестованных методик; 2) воспроизводимостью результатов и их согласованностью с известными экспериментальными и теоретическими данными по исследуемой проблеме, полученными для сплавов циркония, при сравнимых условиях испытаний.

#### **Апробация**

Основные результаты диссертационной работы доложены и обсуждены на: 20-м международном симпозиуме «Цирконий в ядерной промышленности», 2022, Оттава, Канада; Всероссийских научно-технических конференциях «Материалы ядерной техники» (МАЯТ-2014, 2017), АО ВНИИНМ, Москва; VII, VIII и XI Евразийской научно-практической конференции «Прочность неоднородных структур» (ПРОСТ-2014, 2018, 2023), НИТУ «МИСиС», Москва; НТК АО «ТВЭЛ» «Ядерное топливо нового поколения для АЭС. Результаты разработки, опыт эксплуатации и направления развития», АО ВНИИНМ, Москва, 2014; X и XI Российской конференции по реакторному материаловедению, ГНЦ НИИАР, Димитровград, 2013, 2019; TopFuel 2015, Цюрих, Швейцария, 2015; VI Школа-конференция молодых атомщиков Сибири, 2015, ТПУ, Томск;

VI Всероссийская конференция по испытаниям и исследованиям свойств материалов "ТестМат", ВИАМ, Москва, 2015; 10-я Международная Школа молодых ученых и специалистов IHISM'15 Junior имени А.А. Курдюмова, 2015, НИЦ Курчатовский институт, Москва; Международная школа-конференция «Новые материалы – Жизненный цикл материалов: старение и деградация материалов в процессе эксплуатации ЯЭУ», 2016, НИЯУ МИФИ, Москва.

### **Публикации**

По теме диссертации опубликованы 23 печатные работы, из которых 8 статей в научно-технических журналах и изданиях, рекомендованных ВАК, или входящих в международную базу данных цитирования Scopus, и 15 публикаций в материалах научных конференций.

### **Личный вклад автора**

Автор выбирал объекты исследований, непосредственно разрабатывал новую методику испытаний, ставил и проводил эксперименты в процессе всего цикла исследований, обрабатывал и анализировал полученные результаты, готовил публикации и презентации докладов для представления на конференциях.

### **Структура и объём диссертации**

Диссертация изложена на 136 страницах и состоит из раздела с описанием общей характеристики работы, шести глав и основных выводов, содержит 79 рисунков, 8 таблиц, библиографический список из 178 источников и приложения с актом об использовании результатов диссертационной работы и подтверждением участия в проекте МАГАТЭ.

### **Список работ, опубликованных по теме диссертации:**

*Публикации, входящие в перечень ВАК:*

1. **Сабуров Н.С.**, Бекренев С.А., Маркелов В.А. Апробирование новой методики определения порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  при испытаниях на замедленное гидридное растрескивание образцов оболочек твэлов из сплава Zircaloy-4 // Деформация и разрушение материалов. - 2015. - № 2. - С. 35-39.
2. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Бекренев С.А., Шевяков А.Ю., Гусев А.Ю., Котов П.В. Замедленное гидридное растрескивание оболочек твэлов из сплавов циркония различных систем легирования // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2022. - Выпуск 2(113). - С. 79-95.

3. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А. Особенности изломов оболочек твэлов из сплавов циркония после замедленного гидридного растрескивания // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2022. - Выпуск 4(115). - С. 26-36.
4. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А. Прогнозная оценка замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов из сплавов циркония при эксплуатации и сухом хранении отработавших ТВС // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2023. - Выпуск 3(119). - С. 115-131.
5. **Saburov, N.S.**, Markelov, V.A. and Novikov, V.V. “Delayed Hydride Cracking of Fuel Rod Claddings Made of Three Zirconium Alloys,” in Zirconium in the Nuclear Industry: 20<sup>th</sup> International Symposium, ed. S. K. Yagnik and M. Preuss (West Conshohocken, PA: ASTM International, 2023), 173–195, <http://doi.org/10.1520/STP164520220024>.
6. Плясов А.А., Федотов А.В., **Сабуров Н.С.**, Михеев Е.Н., Тенишев А.В., Исаенкова М.Г., Михальчик В.В. Пределы растворимости водорода в циркониевых сплавах Э110опт и Э635 // Ядерная физика и инжиниринг. - 2023. - том 14. - № 1. - С. 12–21.
7. Маркелов В.А., **Сабуров Н.С.**, С.А. Бекренев С.А., Новиков В.В. Определение порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  в испытаниях на ЗГР оболочек твэлов по методу «постоянного перемещения» // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2017. - Вып. 4(91). - С. 47-57.
8. Маркелов В.А., Гусев А.Ю., Котов П.П., Новиков В.В., **Сабуров Н.С.** Температурные зависимости скорости замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов из сплавов циркония различного состава // Деформация и разрушение материалов. - 2012. - №11. - С.42-47.

*Статьи и тезисы докладов российских и зарубежных конференций:*

1. Маркелов В. А., Гусев А. Ю., Котов П.В., Новиков В.В., **Сабуров Н. С.** Температурные зависимости скорости замедленного гидридного растрескивания в оболочках твэлов из сплавов циркония различного состава // X Российская конференция по реакторному материаловедению, г. Димитровград: ОАО "ГНЦ НИИАР", 2013. – С. 50.
2. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А. Отработка методики и результаты испытаний циркониевых оболочек твэлов на замедленное гидридное растрескивание // Всероссийская научно-техническая конференция Материалы ядерной техники (МАЯТ-2014). – М., 2014. –С. 36.
3. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А. Влияние водорода на механические свойства и замедленное гидридное растрескивание оболочек твэлов из сплавов циркония // Научно-техническая конференция ОАО ТВЭЛ Ядерное топливо нового поколения для

АЭС. Результаты разработки, опыт эксплуатации и направления развития (НТК-2014). – М., 2014.

4. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А. Отработка методики испытаний циркониевых оболочек твэлов на замедленное гидридное растрескивание с использованием разрывной машины «Instron 8861» // VII-я Евразийская научно-практическая конференция Прочность неоднородных структур (ПРОСТ 2014). – М., 2014. – С. 42

5. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А. Определение порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  в испытаниях на ЗГР оболочек твэлов по методу «постоянного перемещения» // 10-я Международная Школа молодых ученых и специалистов IHISM'15 Junior имени А.А. Курдюмова – М., 2015. С. 120-121.

6. Markelov V., **Saburov N.**, Bekrenev S., Novikov V. Determination of threshold stress intensity factor,  $K_{IH}$ , in DHC tests of fuel claddings by method of constant displacement // TopFuel 2015 - Zurich, Switzerland., 2015.

7. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А., Новиков В.В. Определение порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  в испытаниях на ЗГР оболочек твэлов по методу «постоянного перемещения» // VI Школа-конференция молодых атомщиков Сибири. – Томск., 2015. – С. 65.

8. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А. Отработка методики и определение порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  при испытаниях на ЗГР образцов оболочек твэлов из сплава Zircaloy-4 // VI Всероссийская конференция по испытаниям и исследованиям свойств материалов "ТестМат". – М., 2015.

9. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Гусев А.Ю., Бекренёв С.А., Шелепов И.А. Пороговые условия для замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов из сплавов циркония // VIII-я Евразийская научно-практическая конференция Прочность неоднородных структур (ПРОСТ 2016). – М., 2016. – С. 199.

10. Котов П.В., **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Воробьёв Е.Е. Параметры замедленного гидридного растрескивания для оболочки твэла из сплава Zr-1Nb при температурах 150-175 °С // VIII-я Евразийская научно-практическая конференция Прочность неоднородных структур (ПРОСТ 2016). – М., 2016. – С. 214

11. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Шелепов И.А., Гончаров И.М. Влияние ориентировки трещины на параметры замедленного гидридного растрескивания в трубе из сплава циркония // VIII-я Евразийская научно-практическая конференция Прочность неоднородных структур (ПРОСТ 2016). – М., 2016. – С. 215.

12. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Гусев А.Ю., Бекренёв С.А., Шелепов И.А. Пороговые условия для замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов из сплавов

циркония // 13-я Международная школа-конференция «Новые материалы – Жизненный цикл материалов: старение и деградация материалов в процессе эксплуатации ЯЭУ». – М., 2016. – С. 73.

13. **Сабуров Н.С.**, Бекренёв С.А., Маркелов В.А. Определение критических параметров для замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов из сплавов Э110опт, Э635М и Zircaloy-4 // Всероссийская научно-техническая конференция Материалы ядерной техники (МАЯТ-2017). – М., 2017. – С. 36.

14. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Бекренёв С.А., Шелепов И.А., Гончаров И.М., Гусев А.Ю. Определение параметров замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов для оценки вероятности их разгерметизации при эксплуатации и сухом хранении отработавшего ядерного топлива // XI конференция по реакторному материаловедению. – Димитровград., 2019. – С. 100-101.

15. **Сабуров Н.С.**, Маркелов В.А., Бекренёв С.А. Стойкость к замедленному гидриднему растрескиванию оболочек твэлов из сплавов циркония трёх систем легирования // XI-я Евразийская научно-практическая конференция Прочность неоднородных структур (ПРОСТ 2023). – М., 2023. – С. 73.

## Глава 1. Аналитический обзор литературы

### 1.1 Циркониевые сплавы для оболочек твэлов

В современной атомной энергетике доминирующая роль отводится водоохлаждаемым реакторам на тепловых нейтронах [27-29], в которых конструктивные элементы тепловыделяющих сборок изготавливают из сплавов циркония. Одной из наиболее ответственных деталей ТВС является оболочка твэлов, которая в процессе эксплуатации подвергается воздействию пароводяной среды теплоносителя при высоких температурах с внешней стороны и воздействию остатков влаги, водорода и продуктов деления топлива с внутренней стороны [1,30]. В качестве материала оболочек твэлов наиболее широко используются сплавы трёх систем легирования циркония [21,31]. Основной системой для создания отечественных сплавов в 1950-х послужила система Zr-Nb, в то время как зарубежные сплавы создавались на основе системы Zr-Sn-Fe. В последствии, в начале 1970-х в России, а затем и за рубежом, были разработаны сплавы системы Zr-Nb-Sn-Fe. По сути, эта система появилась в результате объединения первых двух систем. К оболочечным материалам системы Zr-Nb относятся отечественные сплавы типа Э110 [1,21, 30-34] и, близкий к ним по составу, разработанный во Франции, сплав М5 [21,35,36]. Представителями системы Zr-Sn-Fe являются сплавы Zircaloy-2 и Zircaloy-4 [21,30], разработанные в США. К системе Zr-Nb-Sn-Fe относятся сплавы типа Э635 (Россия) [21,31-33,37,38] и ZIRLO (США) [21,39,40]. Легирующие составы основных промышленных сплавов для оболочек твэлов приведены в таблице 1

Таблица 1.1 – Составы промышленных сплавов циркония для оболочек твэлов

Система	Сплав	Массовая доля легирующего элемента, %					
		Sn	Nb	Fe	Cr	Ni	O
Zr-Nb	Э110	-	0,9-1,1	<0,05	-	-	<0,099
	Э110опт	-	0,9-1,1	0,04-0,07	-	-	0,070-0,099
	М5	-	0,80-1,20	0,015-0,06	-	-	0,09-0,18
Zr-Nb-Sn-Fe	Э635	1,1-1,4	0,9-1,1	0,3-0,5	-	-	0,05-0,12
	Э635М	0,70-0,90	0,70-0,90	0,3-0,4	-	-	0,04-0,10
	ZIRLO	0,90-1,10	0,90-1,10	0,09-0,11	-	-	0,10-0,16
Zr-Sn-Fe (Cr,Ni)	Zircaloy-2	1,20-1,70	-	0,07-0,20	0,05-0,15	0,03-0,08	0,09-0,16
	Zircaloy-4	1,20-1,70	-	0,18-0,24	0,07-0,13	-	0,09-0,16

Как видно из таблицы 1.1, легирующими элементами указанных сплавов являются, главным образом, ниобий (Nb), олово (Sn), железо (Fe) и кислород (O) в различных сочетаниях. В сплавах Zircaloy дополнительно присутствуют хром (Cr) и никель (Ni). Помимо различий в легировании, оболочки из указанных сплавов различаются составом твёрдого раствора, типом выделений второй фазы, структурным состоянием и степенью рекристаллизации.

## 1.2 Водород в сплавах циркония

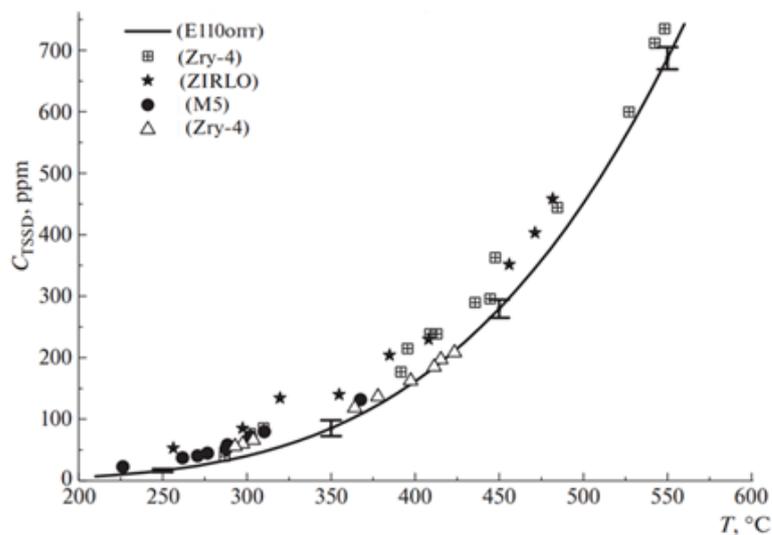
Теплоноситель водо-водяных реакторов достаточно агрессивен по отношению к циркониевым сплавам. В результате коррозионного взаимодействия циркониевых изделий с водой и паром, и радиолиза воды под действием нейтронов, в теплоносителе появляется водород [41]. Часть выделившегося водорода поглощается оболочкой, после чего он в растворенном виде может мигрировать в матрице в зависимости от градиента собственной концентрации, градиентов температуры и напряжения.

### 1.2.1 Предел растворимости и диффузионная подвижность

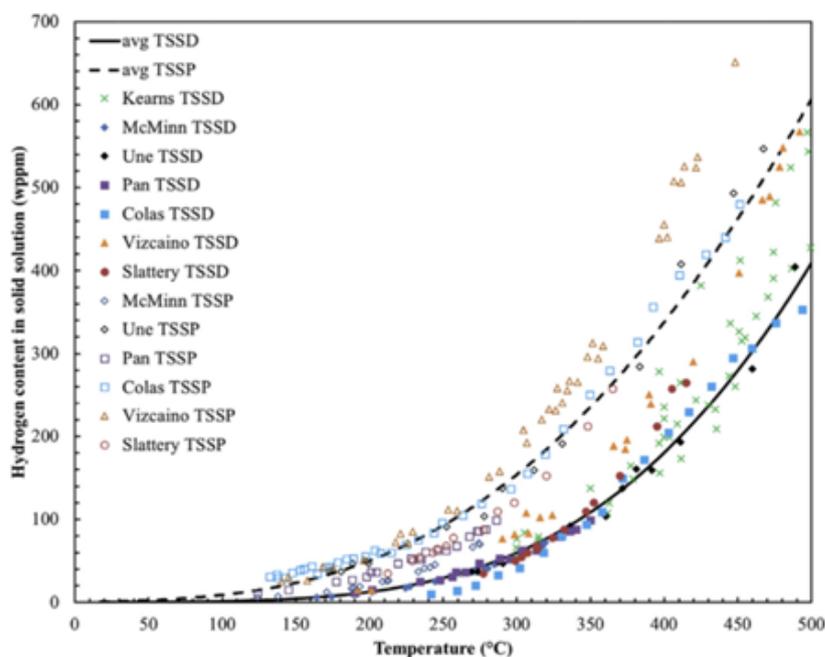
При достижении концентрации водорода выше предела растворимости, в циркониевой матрице образуются пластины гидридов циркония. Объемная доля гидридов зависит от общей концентрации водорода в материале и его предельной растворимости (TSS) при рассматриваемой температуре.

Растворимость водорода в цирконии и его сплавах изучена сравнительно хорошо. В литературе достаточно публикаций, посвященных обобщению и сопоставлению экспериментальных данных, полученных разными методами и для различных сплавов, в том числе отечественных [42-45]. В зависимости от состава сплава и метода исследования наблюдаются незначительные различия в получаемых результатах, однако, большинство из них совпадают в пределах погрешности измерений (рисунок 1.1) [44].

Растворимость водорода имеет явный гистерезис (рисунок 1.1 б) – для данной концентрации водорода гидриды при нагреве растворяются при более высокой температуре (TSSD), чем выделяются при охлаждении (TSSP) [41,43,46,47]. При этом равновесной растворимости соответствует кривая TSSD, а TSSP характеризует максимальное насыщение водородом твердого раствора циркония [43,48]. Наличие гистерезиса растворимости, связано с различием в удельном объеме гидридной фазы и циркониевой матрицы, из-за чего для образования гидрида при охлаждении требуется дополнительная энергия (переохлаждение) [48,49].



а



б

Рисунок 1.1 – Температурные зависимости TSSD и TSSP, для различных циркониевых сплавов, собранных в работах [44] (а) и [45] (б)

На распределение водорода в оболочке твэла влияет ряд факторов [50-54]. При эксплуатации, поступление с наружной поверхности оболочки водорода приводит к его распространению вглубь материала за счёт диффузии (по закону Фика). Одновременно с этим из-за градиента температуры по толщине стенки происходит движение водорода от внутренней (горячей) к наружной (более холодной) поверхности оболочки за счёт термодиффузии. Градиент напряжений также вызывает движение водорода в образце, как показано в работе [3]. Водород диффундирует в область растягивающих гидростатических напряжений. Особенно ярко это наблюдается, когда в образце присутствует острый

напряженный дефект, например, в виде микротрещины. В этом случае водород диффундирует к его вершине, в участок локальной концентрации растягивающих напряжений. В случае, если поток водорода достаточно высок, то в локальном напряженном участке его концентрация может превышать предел растворимости, даже если в остальной части оболочки предел растворимости не превышен.

### 1.2.2 Гидриды, их структура и свойства

Выпадение гидридов в циркониевых сплавах представляет собой фазовый переход первого рода. Гидридная фаза может иметь различную стехиометрию. Наиболее распространенными типами гидридов, упоминаемых в литературе, являются  $\delta$ -гидрид со стехиометрическим составом  $ZrH_{1,6}$  и  $\gamma$ -гидрид с составом от  $Zr_2H_3$  до  $Zr_4H_7$  [55-61]. Высокие скорости охлаждения обычно способствуют образованию  $\gamma$ -гидридов, имеющих гранецентрированную тетрагональную решетку. В условиях низких скоростей охлаждения, которые наблюдаются в реальных условиях при эксплуатации ТВС в реакторе и при последующем хранении ОЯТ, образуются только  $\delta$ -гидриды с гранецентрированной кубической решеткой [61].

Различие в кристаллографической структуре  $\delta$ -гидрида по сравнению с циркониевой матрицей, обладающей ГПУ решеткой, приводит к локальной деформации материала в месте выпадения гидрида. Из-за возникающих вследствие деформации напряжений, гидриды выпадают в форме единичных наноразмерных дисков, расположенных параллельно базисной плоскости ГПУ решетки  $\alpha$ -циркониевой матрицы (рисунок 1.2).

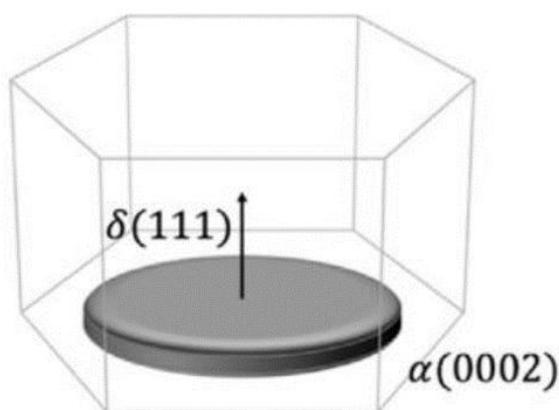


Рисунок 1.2 – Расположение наноразмерного единичного гидрида относительно базисной плоскости циркониевой матрицы

Далее, возникающие вокруг единичных гидридов напряжения, способствуют выпадению других частиц гидридов поблизости, что приводит к образованию протяженных гидридных пластин (рисунок 1.3а) [45].

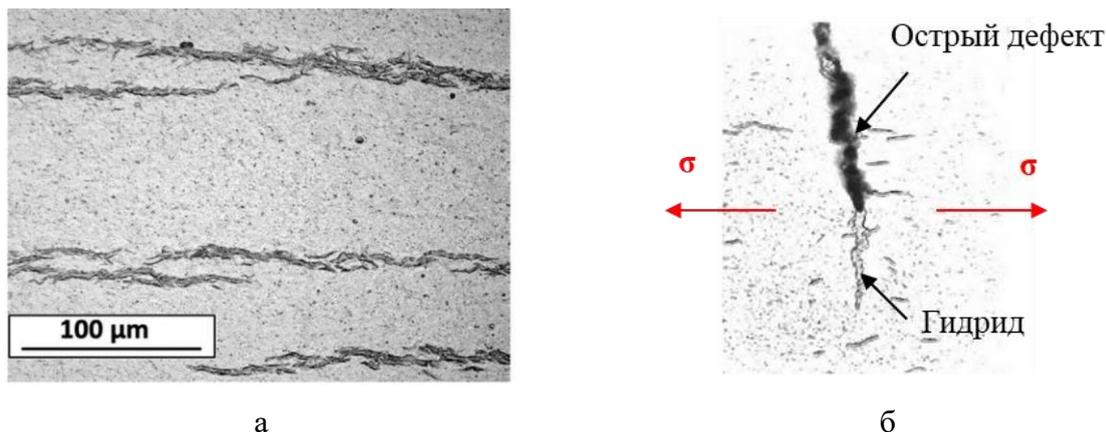


Рисунок 1.3 – Внешний вид протяженных гидридных пластин (а) и выпадение гидрида в вершине острого дефекта (б)

Помимо текстуры материала, на ориентацию образующихся гидридов оказывает влияние напряженное состояние матрицы. Так, гидридные пластины ориентируются перпендикулярно растягивающим напряжениям [55]. В случае их наличия, гидрид выпадает в соответствии с возникающим полем напряжений (максимальные растягивающие напряжения наблюдаются в вершине трещины (рисунок 1.3 б)).

Литературных данных по исследованиям механических свойств гидридов циркония сравнительно мало. Данный факт обусловлен трудностью подготовки образцов для испытаний, т.к. для распространенных методов механических испытаний требуются образцы относительно больших размеров. Крупномасштабные образцы гидрида циркония очень хрупкие, вследствие образования пор и трещин из-за анизотропного расширения материала, возникающего при наводороживании образцов до высоких концентраций водорода [63,64]. Такие результаты нельзя переносить на гидриды, образующиеся в оболочке твэла в условиях эксплуатации, так как при этом содержание водорода в циркониевой матрице находится в диапазоне 50-600 ppm в зависимости от состава сплава и температуры. В этом случае, наибольший интерес представляют напряжения, достаточные для разрушения гидрида, находящегося в матрице, а не прочность самого гидрида. Из анализа опубликованной информации [3,64-75] можно утверждать, что гидрид циркония не имеет пластической области при низких температурах. Вероятность его разрушения в сплавах циркония зависит от величины прикладываемого напряжения, длины гидрида, величины пластической деформации матрицы, предела текучести матрицы, температуры и напряженного состояния. Напряжения в матрице необходимые для разрушения гидрида находятся в диапазоне 600-800 МПа и практически не зависят от температуры до ее

критического значения, при котором материал матрицы начинает пластически деформироваться до момента разрушения гидрида [72,74,75].

### 1.2.3 Влияние водорода и гидридов на свойства сплавов

Гидридные выделения могут вызывать снижение пластичности и вязкости циркониевого сплава, и действовать как зародыши трещин для хрупкого разрушения. При этом, ключевую роль играет ориентация гидридов относительно направления прикладываемых напряжений. В случае, когда гидридные пластины расположены параллельно оси напряжений, при деформациях достаточной величины в них образуются отдельные пустоты, что не оказывает заметного влияние на пластичность материала в целом (рисунок 1.4).

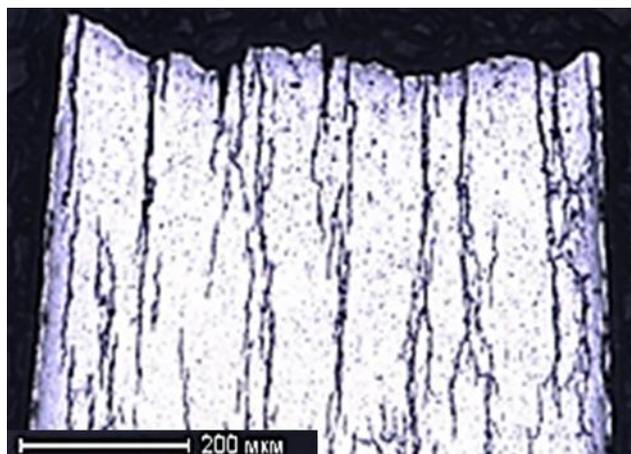


Рисунок 1.4 – Участок вблизи излома при разрушении образца с тангенциальной ориентацией гидридов в оболочке (ось напряжений направлена вертикально)

В случае, когда гидриды выпадают в направлении, перпендикулярном оси прикладываемых напряжений, их разрушение приводит к образованию протяженных трещин, способствующих хрупкому разрушению образца (рисунок 1.5). В радиальном направлении оболочки гидриды могут выпадать при наличии растягивающих напряжений, величина которых, в зависимости от состава сплава, типа изделия, способа нагружения и метода извлечения информации из экспериментальных данных, находится в диапазоне (50-200) МПа [76-82].

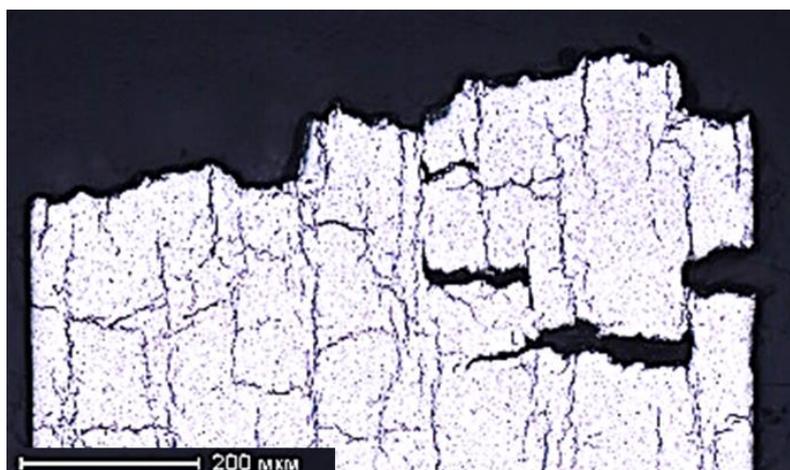


Рисунок 1.5 – Участок вблизи излома при разрушении образца с радиальной ориентацией гидридов в оболочке (ось растягивающих напряжений направлена вертикально)

Применяемая технология прокатки оболочечных труб обеспечивает текстуру материала, способствующую выпадению тангенциально-ориентированных гидридов (при условии отсутствия растягивающих напряжений) [1,83]. Оболочечные трубы с такой, как правило, радиальной текстурой сохраняют свою пластичность вплоть до высоких концентраций водорода (более 500 ppm) [84] (рисунок 1.6), когда гидриды начинают выпадать в виде плотной «сетки», по которой может проходить хрупкое разрушение.

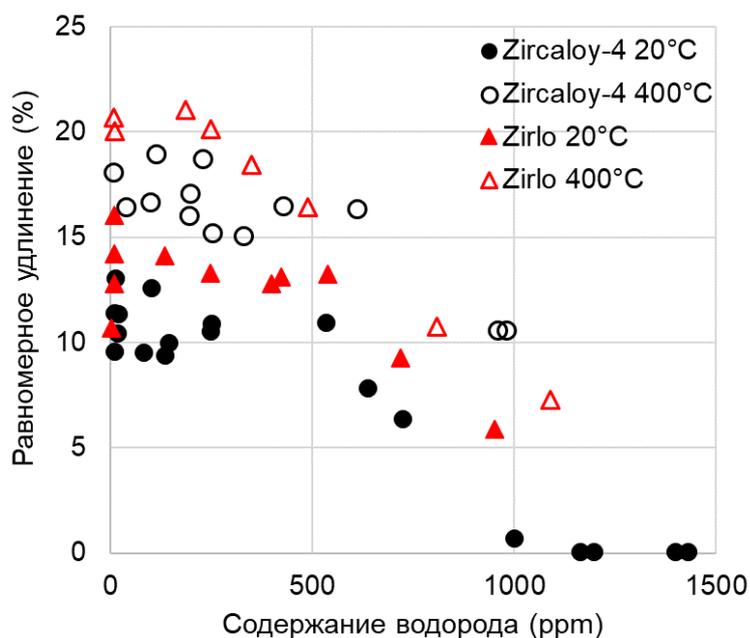


Рисунок 1.6 – Зависимость равномерного удлинения кольцевых образцов из сплавов Zircaloy-4 и Zirlo от содержания водорода [84]

Совокупность таких факторов как низкая растворимость водорода в сплавах циркония и ее сильная зависимость от температуры, наличие пересыщенного твердого раствора при охлаждении, диффузионная подвижность водорода, способность гидридов к ориентированному выделению под действием растягивающих напряжений, а также низкая пластичность гидридов, приводят к реализации зависящего от времени механизма разрушения материала, о котором пойдет речь ниже.

### **1.3 Замедленное гидридное растрескивание**

#### **1.3.1 Механизм и условия проявления ЗГР**

Существуют условия, когда сравнительно невысокие растягивающие напряжения (значительно меньше предела текучести циркониевой матрицы и порогового значения для переориентации гидридов) могут приводить к разрушению конструктивного элемента из циркониевого сплава. Такие условия реализуются при наличии в материале острого дефекта (микротрещины). В этом случае растворенный водород диффундирует в область высоких градиентов напряжений в вершине микротрещины. Далее, при достижении предела растворимости водорода в локальном участке, выделяется гидрид, ориентированный перпендикулярно приложенному растягивающему напряжению. Выделившийся гидрид постепенно увеличивается в размере за счёт продолжающегося поступления в эту область водорода. Локализующиеся вблизи растущего гидрида напряжения, могут в несколько раз превышать средние по сечению и, согласно законам линейно-упругой механики разрушения [85-88], достигать предельных значений для растрескивания гидрида, когда размер гидрида достигнет критической величины. Затем процесс повторяется, приводя к прерывистому росту трещины. Процесс накопления водорода и последующее гидридное растрескивание протекают до тех пор, пока в циркониевом конструктивном элементе не возникнет сквозная течь или пока не происходит его разрушение. Такой механизм деградации получил название - Замедленное Гидридное Растрескивание (ЗГР). Схематично этапы развития трещины по механизму ЗГР проиллюстрированы на рисунке 1.7.

Прерывистость процесса ЗГР хорошо иллюстрируется при использовании средств непрерывного контроля роста трещины в испытаниях образца (рисунок 1.8 а), включая методы падения электрического потенциала, акустической эмиссии и др. Подтверждают этот факт и фрактографические исследования в световом и сканирующем микроскопах, показывающие наличие на поверхности излома зон квазискола и перемычек вязкого разрушения между ними в виде, так называемых, бороздок в местах остановок хрупкой гидридной трещины (рисунок 1.8 б,в) [89-93].

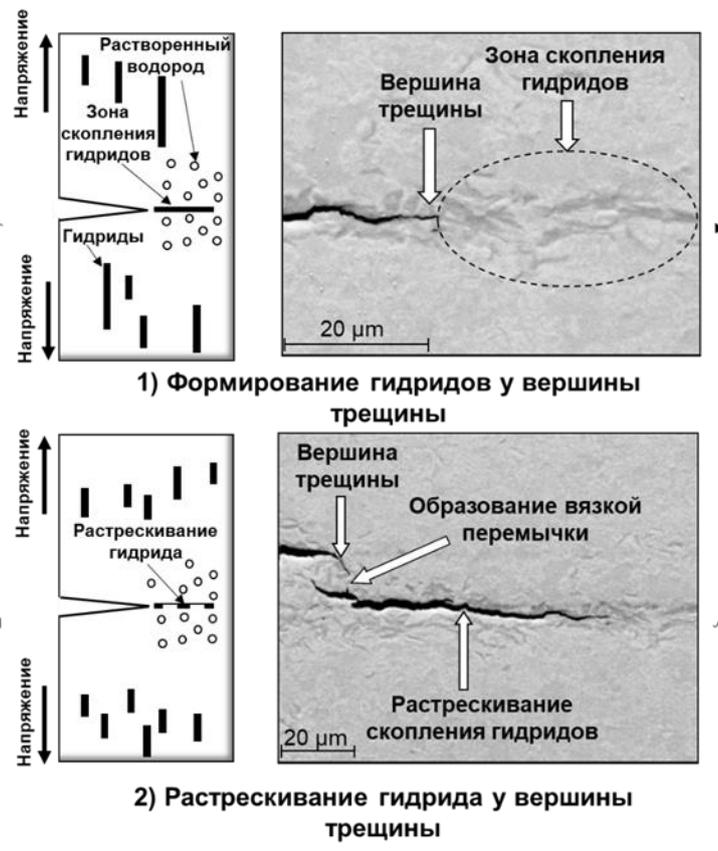


Рисунок 1.7 – Схема этапов разрушения циркониевого элемента по механизму ЗГР

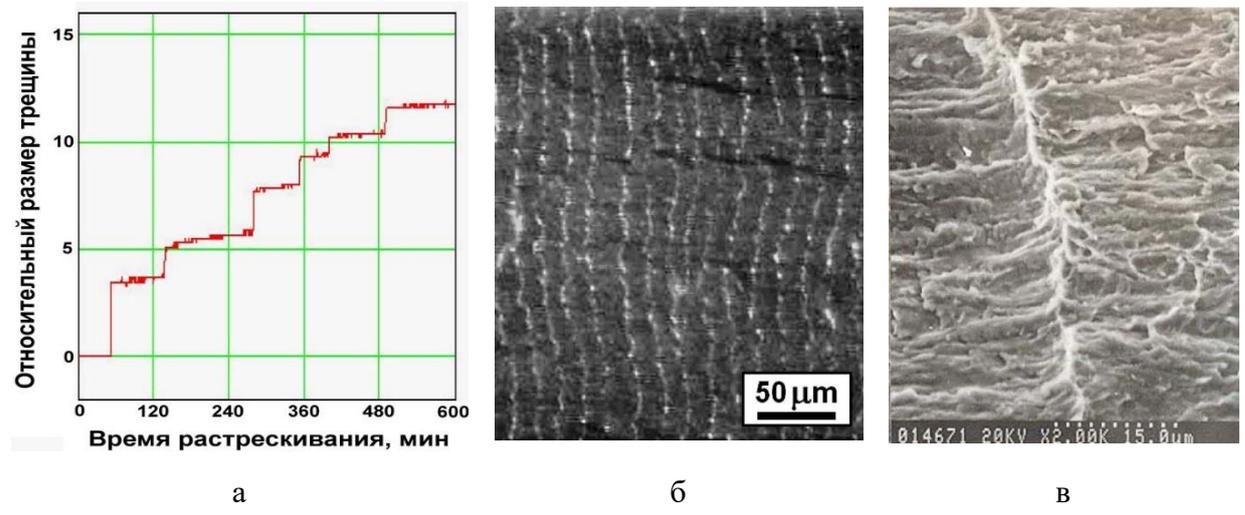


Рисунок 1.8 – Фрагмент диаграммы кинетики прерывистого роста трещины ЗГР (а) с образованием на поверхности излома вязких бороздок в образце трубы давления из сплава Zr-2,5Nb (световой микроскоп, направление роста трещины слева направо) (б). Вид бороздки в сканирующем микроскопе (в) [93]

Принимая во внимание вышеизложенное, применительно к циркониевым конструктивным элементам, включая оболочки твэлов, возникновение в них процесса ЗГР возможно в следующих условиях:

- Концентрация водорода должна превышать предел растворимости для образования гидридов при рассматриваемой температуре;
- Локальные растягивающие напряжения и размер острого дефекта должны быть достаточными для диффузии водорода в вершину дефекта, выпадения там гидрида, ориентированного перпендикулярно растягивающим напряжениям, последующего роста этого гидрида до размера критической величины и затем его растрескивания.

### 1.3.2 Основные параметры ЗГР и модельные представления для их прогноза

Как отмечалось выше, для реализации механизма ЗГР в циркониевом материале необходимо наличие острого дефекта, например, в виде трещины, и растягивающих напряжений. Величину поля напряжений, возникающих у вершины трещины, характеризует размерный коэффициент интенсивности напряжений  $K_I$ , являющийся функцией от приложенных напряжений и длины трещины [94]. Причем вид этой функциональной зависимости определяется геометрическими размерами образца с трещиной и характером приложения нагрузки. Так, для оболочки твэла, величина  $K_I$  зависит от внутреннего давления в твэле, типоразмера оболочки, длины и формы трещины [87,88]. ЗГР возможно только в том случае, когда  $K_I$  превысит пороговое значение для рассматриваемого циркониевого материала.

Попытки спрогнозировать пороговую величину  $K_I$  описаны в работах [95-99]. Наиболее точной считается модель в основе которой лежит установление взаимосвязи между  $K_I$  и критической длиной гидрида достаточной для его растрескивания. Исходя из данной модели было выведено уравнение разрушения гидрида вблизи вершины трещины [95], которое удовлетворительно описывает пороговое значение  $K_I$  до определенных температур.

Так как ЗГР является механизмом разрушения, зависящим от времени, то одним из его основных параметров является скорость развития трещины.

Для прогноза скорости ЗГР в циркониевых материалах наибольшее распространение получили две модели, в которых движущей силой процесса растрескивания является градиент напряжения [100]. Обе модели используют уравнение Эйнштейна для описания диффузионного потока водорода  $J$ , движущегося в твердом растворе под воздействием

градиентов концентрации водорода и приложенного напряжения. В соответствии с [100], это уравнение выглядит следующим образом:

$$J = -D\nabla C - D \frac{cV}{RT} \nabla \sigma \quad (1.1)$$

где  $J$  – диффузионный поток;

$C$  – концентрация водорода в твердом растворе;

$\sigma$  – гидростатическое напряжение;

$V$  – парциальный молярный объём водорода;

$D$  – коэффициент диффузии водорода при температуре  $T$ ;

$R$  – универсальная газовая постоянная.

В уравнении (1.1) первое слагаемое – это закон Фика, отвечающий за диффузию водорода из области с его высокой концентрацией в область с более низкой, а второе слагаемое – дрейфовый поток водорода к вершине трещины, возникающий под действием внешних напряжений. Общий приток водорода к вершине трещины при растяжении является этапом, ограничивающим скорость ЗГР.

Первая модель была предложена Даттоном с соавторами [101] и доработана Пулсом [102]. В исходной версии модели не учитывался дрейф водорода, так как предполагалось, что парциальный молярный объём водорода  $V$  мал, и движение описывалось только законом Фика. В этой модели также предполагается, что приложенное напряжение способствует выходу водорода из твердого раствора и образованию гидрида у вершины острого дефекта, таким образом, осаждение гидрида является первым этапом процесса ЗГР. Поэтому эта модель называется Precipitation First Model (PFM) [100].

Вторая модель основана на том, что дрейфовый член не следует игнорировать [100]. Согласно этой модели, водород перемещается к вершине трещины при растяжении из-за положительного градиента напряжений в дрейфовом члене уравнения (1.1). Водород, скапливающийся у вершины острого дефекта, создает градиент концентрации с обратным знаком по отношению к градиенту напряжения. Концентрация водорода у вершины трещины будет увеличиваться до тех пор, пока диффузионный и дрейфовый токи не сравняются ( $J = 0$ ). Если концентрация водорода, накапливающегося в вершине трещины, достигает значения, при котором гидрид может выделиться, концентрация водорода в растворе остается фиксированной на уровне предела растворимости, и поток водорода будет иметь постоянное установившееся значение ( $J < 0$ ). В этой модели первым шагом является диффузия за счёт потока водорода к вершине трещины. Поэтому данная модель ЗГР называется Diffusion First Model (DFM) [100]. В настоящее время эта модель считается наиболее проработанной.

Предложена также ещё одна менее распространённая модель, согласно которой, движущей силой является не градиент напряжений, а степень пересыщения твёрдого раствора водородом [109]. Согласно этой модели, скорость ЗГР контролируется диффузией водорода и градиентом его концентрации в вершине трещины, тогда как в DFM - диффузией и растворимостью водорода в материале.

Скорость роста трещины по механизму ЗГР с величиной  $K_I$  в её вершине связывает зависимость, представленная на рисунке 1.9 [17,18,106].

Основными параметрами этого механизма, определяющими стойкость циркониевого материала к ЗГР, являются:

- пороговый коэффициент интенсивности напряжений ( $K_{IH}$ ) в вершине трещины (при его превышении трещина начинает расти);
- скорость стабильного роста трещины ( $V_{ЗГР}$ ) в интервале  $K_I$  от  $K_{IH}$  до значения  $K_{IC}$ , выше которого происходит нестабильный рост трещины (быстрое разрушение).

Стоит отметить, что скорость распространения гидридной трещины на участке стабильного роста слабо зависит от коэффициента интенсивности напряжений.

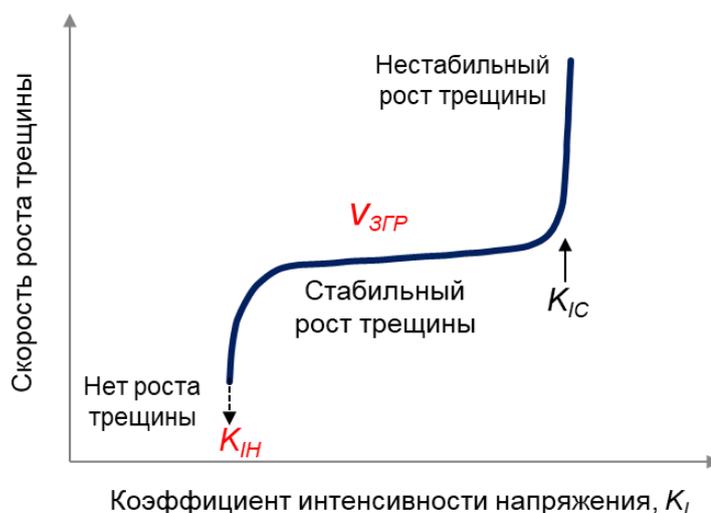


Рисунок 1.9 - Зависимость скорости роста трещины от коэффициента интенсивности напряжений в её вершине

В материале с большим значением  $K_{IH}$  время до начала разрушения по механизму ЗГР, называемое инкубационным периодом, увеличивается [107,108]. Инкубационный период ЗГР складывается из времени миграции водорода к дефекту, образования гидроксида и времени его роста до критического размера. Последующее быстрое разрушение гидроксида приводит к первому скачкообразному продвижению трещины.

Оценить стойкость циркониевых конструктивных элементов, включая оболочки твэлов, к разрушению по механизму ЗГР при эксплуатации и послереакторном обращении возможно только если для рассматриваемого материала в конкретных условиях определены или могут быть спрогнозированы основные параметры ЗГР. Для этого необходимо проанализировать имеющиеся экспериментальные данные по влиянию на ЗГР различных факторов, включая нейтронное облучение, и выявить из них ключевые.

### 1.3.3 Влияние различных факторов на основные параметры ЗГР

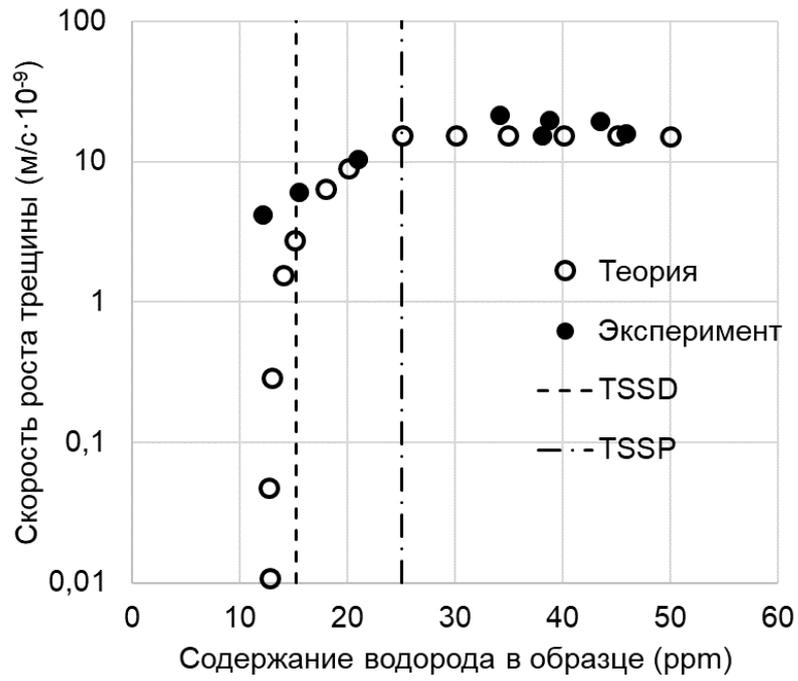
Факторы, влияющие на основные параметры ЗГР циркониевого конструктивного элемента, можно условно разделить на внутренние и внешние. К внутренним факторам относятся легирующий состав сплава, структурно-фазовое состояние, текстура, прочность и вязкость циркониевой матрицы. К внешним факторам - наводороживание, напряжения, флюенс нейтронов, температура и способ ее достижения.

Далее рассмотрены факторы в наибольшей степени влияющие на характеристики ЗГР, по которым имеются опубликованные экспериментальные результаты. .

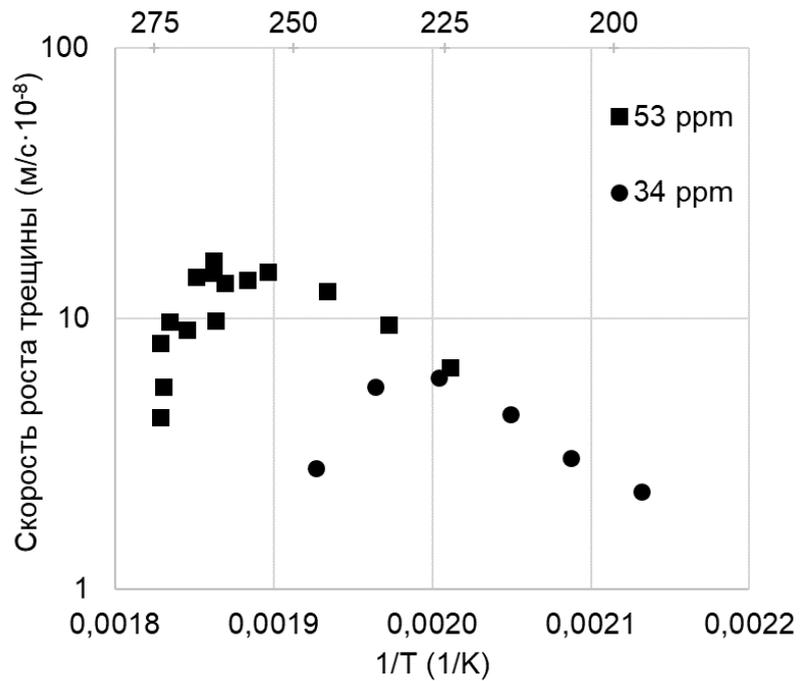
#### *Наводороживание*

Как отмечалось выше, для развития трещины по механизму ЗГР в циркониевом конструктивном элементе ТВС содержание поглощенного им водорода в результате коррозии при эксплуатации, должно быть выше предела растворимости при данной температуре (TSSD). При охлаждении, из-за гистерезиса растворимости, в диапазоне между TSSD и TSSP водород находится в пересыщенном твердом растворе, степень пересыщения которого может рассматриваться в качестве одной из движущих сил процесса ЗГР [109].

В работе [110] построены модельная и экспериментальная скорости ЗГР от содержания водорода для сплава Zr-2,5Nb при температуре 182 °С. Содержание водорода выше предела растворимости TSSP не оказывает влияние на скорость роста трещины ЗГР, в то время как при снижении концентрации водорода ниже TSSP скорость ЗГР снижается и стремится к нулю при концентрациях ниже предела растворимости TSSD (рисунок 1.10а). В работе [111] были построены температурные зависимости скорости ЗГР для образцов с различной концентрацией водорода. Из этих данных видно, что температура резкого снижения скорости ЗГР близка к TSSD и составляет 250 и 275 °С для образцов с содержанием водорода 34 и 53 ppm соответственно (рисунок 1.10 б).



а



б

Рисунок 1.10 - Зависимости скорости ЗГР от содержания водорода в образцах из сплава Zr-2,5Nb, полученные в работах [110] (а) и [111] (б)

Отдельно стоит отметить важный факт, что из-за наличия гистерезиса растворимости водорода его содержание в твердом растворе при одной и той же температуре зависит от того, как достигается эта температура (в ходе нагрева или охлаждения). Подробнее такая особенность проявления ЗГР рассмотрена ниже при анализе влияния температуры на его основные параметры.

Изучение влияния содержания водорода в твердом растворе на пороговый коэффициент интенсивности напряжений показало, что с увеличением концентрации водорода в пересыщенном твердом растворе  $K_{IH}$  снижается [96]. Так, в экспериментах по испытанию на ЗГР образцов сплава Zr-2,5Nb при температуре 250 °С,  $K_{IH}$  снижается с 12-14 до 8-9 МПа·м<sup>1/2</sup> с увеличением содержания водорода от 40 до 70 ppm (рисунок 1.11).

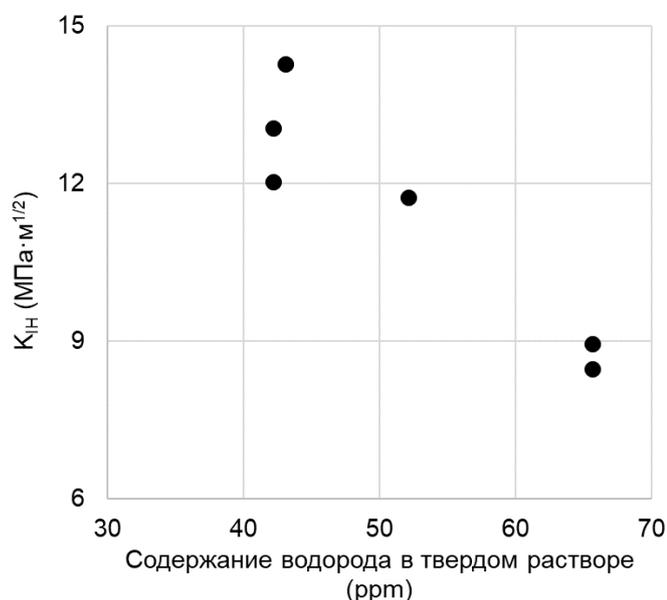


Рисунок 1.11 – Зависимость порогового коэффициента интенсивности напряжений от содержания водорода в пересыщенном твердом растворе сплава Zr-2,5Nb [96]

Таким образом, содержание водорода однозначно является определяющим фактором для инициирования и развития трещины по механизму ЗГР. Его следует учитывать и в прогнозных оценках стойкости материала к развитию трещины по данному механизму. В лабораторных испытаниях на ЗГР образцы должны содержать водород в достаточном количестве. В случае консервативного подхода к испытаниям с целью обеспечения максимальной скорости ЗГР и минимального значения  $K_{IH}$  содержание водорода в образцах должно превышать предел растворимости TSSP при температуре эксперимента.

### Температура и способ её достижения

Температурная зависимость скорости ЗГР в общем виде схематично представлена на рисунке 1.12 [18,22,100]. Она зависит от нескольких факторов.

Во-первых, характер этой зависимости определяется направлением приближения к температуре испытаний (нагрев или охлаждение). Если температура испытаний достигается путем нагрева от меньшей температуры  $T_1$ , то сначала скорость ЗГР растёт с температурой, а при дальнейшем ее повышении до  $T_2$  скорость ЗГР начинает падать и стремится к нулю при температуре  $T_3$  (рисунок 1.12). В работах [107,112] экспериментально показано, что в случае, когда температура достигалась путем нагрева от меньшей температуры, выше температуры  $200\text{ }^{\circ}\text{C}$  скорость ЗГР становится пренебрежимо малой по сравнению со случаем, когда температура достигалась путем охлаждения от более высоких значений. Влияние способа достижения температуры испытаний на скорость ЗГР возникает из-за разницы температуры выпадения и растворения гидридов [107].

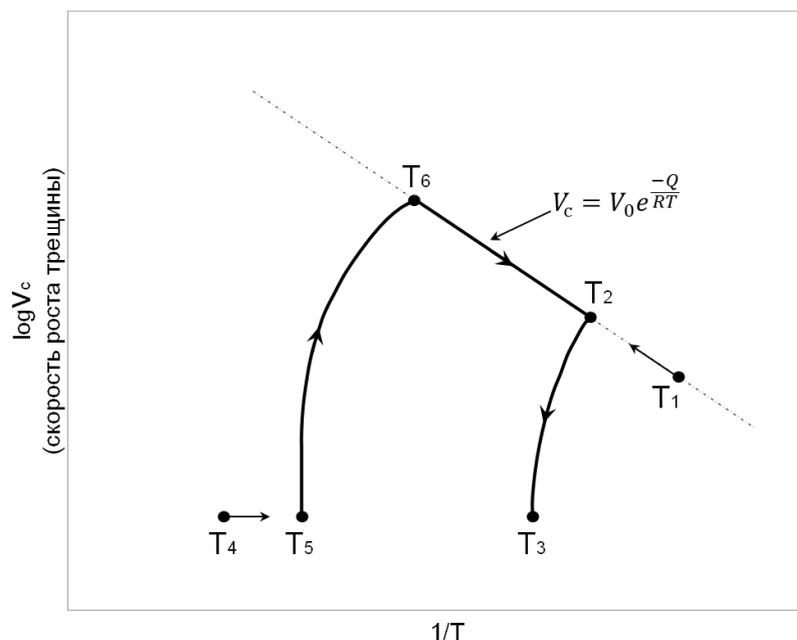


Рисунок 1.12 – Схематичная диаграмма температурной зависимости скорости ЗГР в циркониевых сплавах [22]

Как показано выше, максимально возможная скорость ЗГР для материала с определенным содержанием водорода реализуется, когда максимальное количество водорода находится в пересыщенном твердом растворе. Такое состояние можно достичь при охлаждении с температуры выше TSSD ( $T_4$  на рисунке 1.12), когда весь водород находится в твердом растворе. На рисунке 1.13 приведен пример зависимости скорости роста трещины в экспериментах на ЗГР при  $250\text{ }^{\circ}\text{C}$  в зависимости от значения

максимальной (пиковой) температуры перед началом охлаждения образцов до температуры испытаний (содержание водорода 60 ppm) [113].

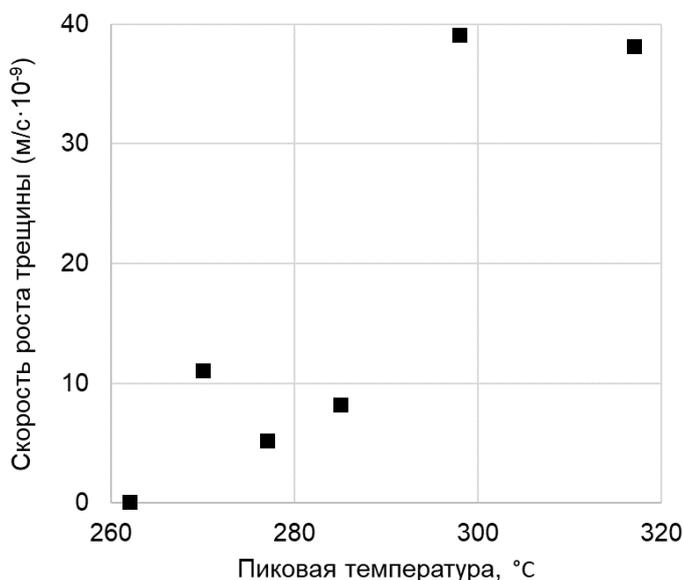


Рисунок 1.13 – Зависимость скорости роста трещины ЗГР при испытании образцов из сплава Zr-2,5Nb от температуры, с которой проводилось охлаждение до температуры испытания 250°C при содержании водорода 60 ppm [113]

Во-вторых, для каждого материала существует температура, выше которой развитие трещины по механизму ЗГР не возникает, несмотря на то, что температура испытания достигнута охлаждением, и значительная часть водорода пошла на образование гидридов. Такая характерная температура на температурной зависимости  $V_{ЗГР}$  называется верхним температурным пределом ( $T_{ВТП}$ ).

Показательно, что подобная температурная зависимость скорости ЗГР была экспериментально получена как для материала труб давления из сплава Zr-2,5Nb (рисунок 1.14), так и для оболочек твэлов из сплава Zircaloy-4 (рисунок 1.15). Выше  $T_{ВТП}$  циркониевый материал проявляет иммунитет к ЗГР [18,22,100,114,115]. Большинство авторов сходятся во мнении, что иммунитет к ЗГР является следствием релаксации напряжений в вершине трещины выше определенной температуры, в результате чего вместо растрескивания гидроксида может происходить притупление вершины трещины, особенно для материалов сравнительно низкой прочности.

На участке стабильного роста трещины скорость ЗГР экспоненциально зависит от обратной величины температуры (рисунки 1.14 и 1.15).

Процесс ЗГР на этом участке является термически активируемым и при температурах ниже  $T_{\max}$  подчиняется соотношению Аррениуса (1.2), что экспериментально показано в работах [19,22,100,115]:

$$V = A \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (1.2)$$

где  $Q$  – энергия активации ЗГР, Дж/моль;

$R$  – газовая постоянная (8,314 Дж/моль);

$T$  – температура, К;

$A$  – постоянная.

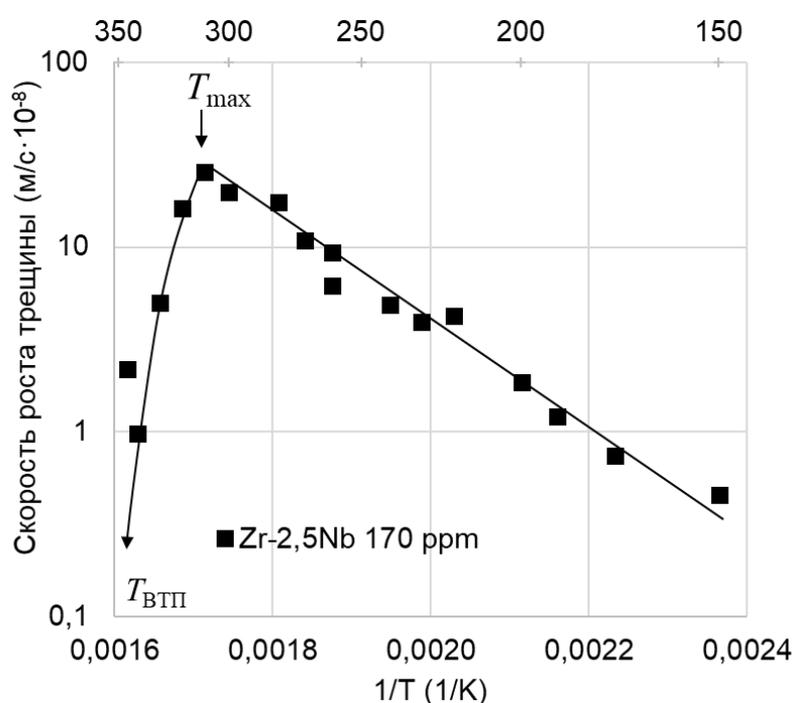


Рисунок 1.14 – Температурная зависимость скорости роста трещины ЗГР образцов от труб давления из сплава Zr-2,5Nb в необлучённом состоянии [19]

Температура  $T_{\max}$ , при которой наблюдается максимальная скорость ЗГР, характерна для каждого циркониевого материала. Выше  $T_{\max}$  скорость ЗГР перестает подчиняться соотношению Аррениуса и между температурами  $T_{\max}$  и  $T_{\text{ВТП}}$  происходит резкое снижение  $V_{\text{ЗГР}}$  вплоть до нулевых значений (рисунки 1.14 и 1.15). Выше  $T_{\text{ВТП}}$ , как уже отмечалось, циркониевый материал проявляет иммунитет к ЗГР.

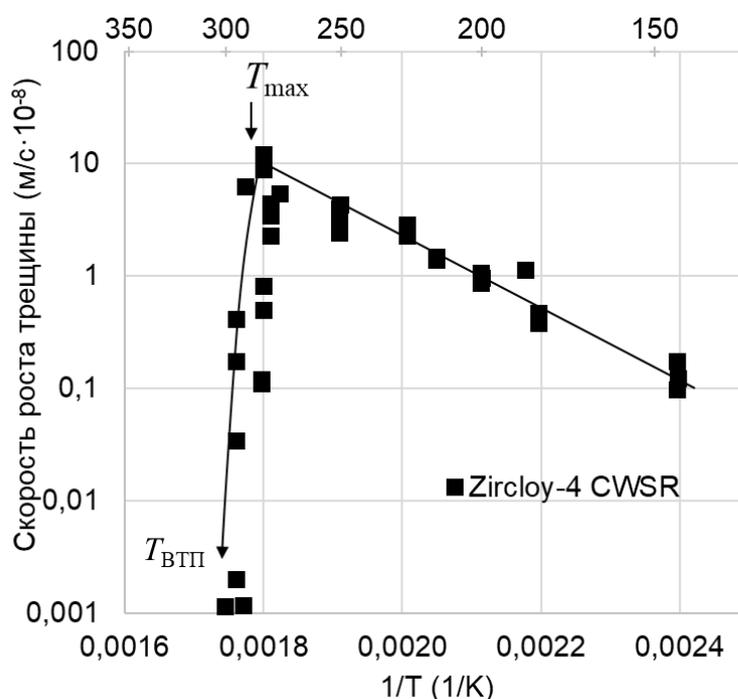


Рисунок 1.15 – Температурная зависимость скорости роста трещины ЗГР образцов от оболочечных труб из сплава Zircaloy-4 в необлучённом состоянии [22]

Температурная зависимость скорости роста трещины должна учитываться в расчётах разрушения циркониевого конструктивного элемента по механизму ЗГР, анализе реакторных условий, а также при проведении экспериментов с целью достижения максимальной  $V_{ЗГР}$  за счет охлаждения к температуре испытания.

Проведенные различными исследователями эксперименты по влиянию температуры на значение величины  $K_{IH}$  показали, что для труб давления CANDU из сплава Zr-2,5Nb (рисунок 1.16) и оболочек твэлов из сплава Zircaloy-4 (рисунок 1.17) в интервале температур от 140 до 280 °С  $K_{IH}$  меняется слабо [17,20,116-120]. Однако при температуре испытаний вблизи и выше  $T_{max}$  для каждого материала происходит значительное возрастание  $K_{IH}$  (рисунки 1.16 и 1.17) [17,20,120], как это следует из температурной зависимости скорости роста трещины ЗГР (рисунки 1.14 и 1.15). При температурах выше значения  $T_{ВТП}$  растрескивание по механизму ЗГР не реализуется.

Необходимо подчеркнуть, что часть экспериментальных результатов для оболочек из сплава Zircaloy-4, приведенных на рисунке 1.17, получена с участием автора настоящей работы в рамках реализации проекта МАГАТЭ [17].

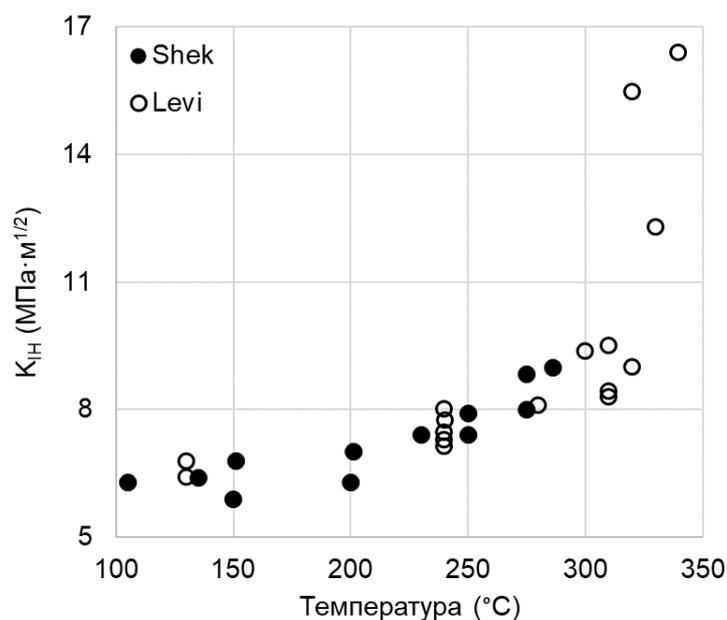


Рисунок 1.16 – Температурная зависимость порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$ , полученная при испытании труб давления из сплава Zr-2,5Nb [20,120]

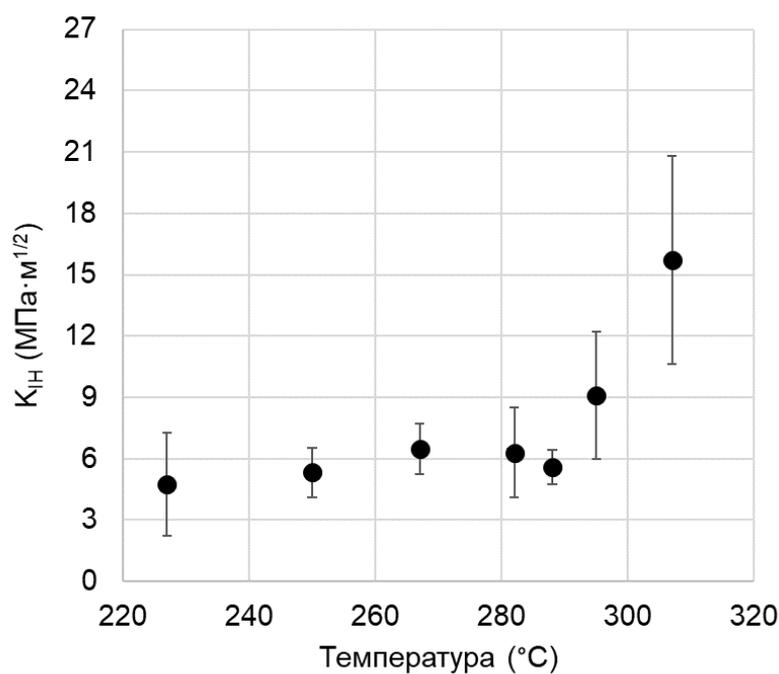


Рисунок 1.17 – Температурная зависимость порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$ , полученная при испытании оболочечных труб из сплава Zircaloy-4 [17]

Анализ влияния температуры на основные параметры ЗГР показал, что температура (и способ её достижения) является еще одним ключевым фактором для инициирования и развития трещины по механизму ЗГР. Построение температурной зависимости  $V_{ЗГР}$  от

температуры и определение  $T_{\max}$  и  $T_{\text{ВТП}}$  позволяет выявить температурный интервал, в котором возможно развитие трещины по механизму ЗГР, а также спрогнозировать время до появления сквозного дефекта вследствие ЗГР.

#### *Характеристики циркониевого материала*

Как известно, свойства любого материала определяются его легирующим составом и структурно-фазовым состоянием. Это относится и к сплавам циркония, включая их стойкость или склонность к замедленному гидридному растрескиванию. По имеющимся к настоящему времени данным целенаправленные исследования влияния количественных характеристик легирования циркония на параметры ЗГР не проводились, а исследования влияния на ЗГР структурно-фазовых особенностей циркониевого материала немногочисленны. В частности, изучалась роль протяжённых прослоек  $\beta$ -Zr фазы в структуре труб давления CANDU из сплава Zr-2,5Nb. В экспериментах показано, что наличие таких прослоек приводит к возрастанию скорости ЗГР, так как они являются каналами «облегчённой» диффузии водорода в вершину трещины [121,122], поскольку коэффициент диффузии водорода в  $\beta$ -Zr почти на два порядка выше, чем в  $\alpha$ -Zr [123].

По результатам анализа опубликованных данных следует в первую очередь отметить, что влияние легирующего состава и структурно-фазового состояния циркониевого материала на параметры ЗГР проявляется опосредованно через его прочность и вязкость разрушения. В общем случае, чем выше прочность материала, тем выше скорость ЗГР. Достаточно наглядно это показано на образцах труб давления из сплавов Zr-2,5Nb и Э635 в необлучённом состоянии (рисунок 1.18), когда с увеличением предела текучести ( $\sigma_{0,2}$ ) от 250 до 600 МПа (определялся при растяжении образцов лопаточного типа) скорость стабильного роста трещины ЗГР при температуре 250 °С возрастает более, чем на полтора порядка [106]. При этом, несмотря на различия в химическом составе, структурно-фазовом состоянии и текстуре образцов наблюдается единая линейная зависимость скорости ЗГР (в логарифмических координатах) от прочности сплавов.

Аналогичную тенденцию возрастания  $V_{\text{ЗГР}}$  с увеличением предела текучести материала при температуре 300 °С в том же диапазоне значений напряжений наблюдали и для оболочек твэлов из сплава Zircaloy-2 (предел текучести определялся путем измерения твёрдости по Виккерсу, рисунок 1.19) [25].

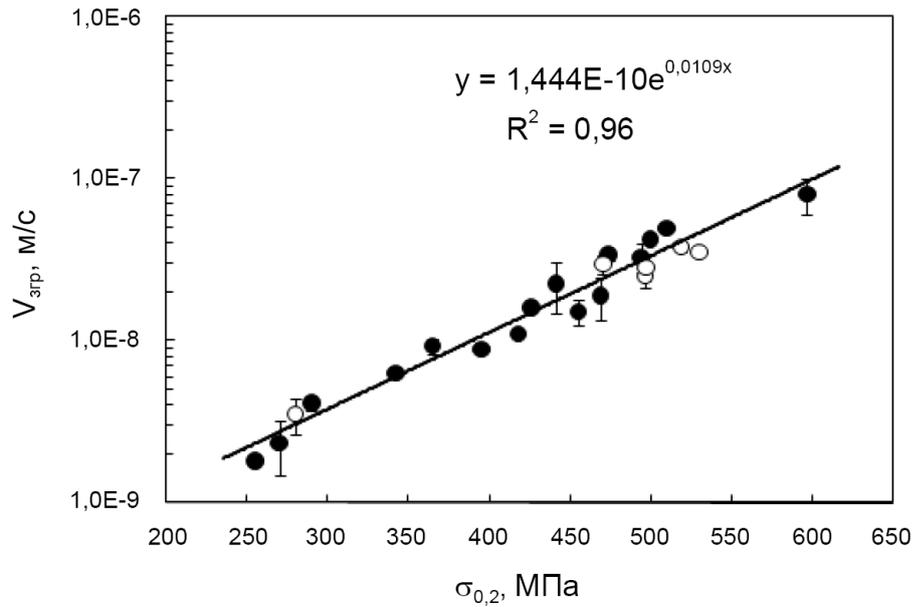


Рисунок 1.18 - Зависимость осевой скорости роста трещины ЗГР при 250°C от величины предела текучести: для труб давления из сплавов циркония:  
 ● – Zr-2,5%Nb; ○ – Э635 [106]

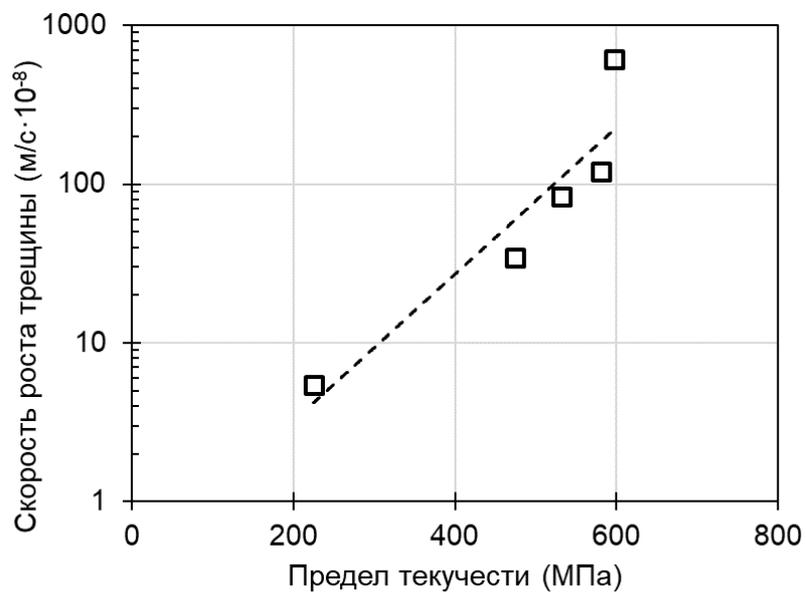


Рисунок 1.19 - Зависимость осевой скорости роста трещины ЗГР от величины предела текучести для оболочек твэлов из сплава Zircaloy-2 при 300°C [25]

В работе [106] показано, что затруднения с инициированием процесса ЗГР в образцах из сплава Zr-2,5Nb сравнительно низкой прочности ( $\sigma_{0,2} \sim 255-350$  МПа) и, связанные с этим, высокие значения  $K_I$  для старта гидридной трещины, а также длительный инкубационный

период, указывают на то, что величина  $K_{II}$ , как и скорость ЗГР, зависит от предела текучести материала

Проведённые автором работы [106] эксперименты позволили получить для сплава Zr-2,5Nb при 250 °С практически линейную зависимость  $K_{II}$  от предела текучести (рисунок 1.20а). Это также приводит к линейной зависимости скорости ЗГР от  $K_{II}$  (в логарифмическом масштабе) для осевого направления трещины в трубе (рисунок 1.20б).

Согласно результатам работ [124,125] влияние на скорость ЗГР циркониевого сплава должна оказывать и его кристаллографическая текстура, и весьма значительным образом. Для корректной оценки этого фактора в [106] исследовались образцы труб давления из двух сплавов Zr-2,5Nb и Э635 с существенно различной текстурой, но с близкими значениями предела текучести в направлении нормали к плоскости гидридного растрескивания ( $\sigma_{0,2} = 470-519$  МПа).

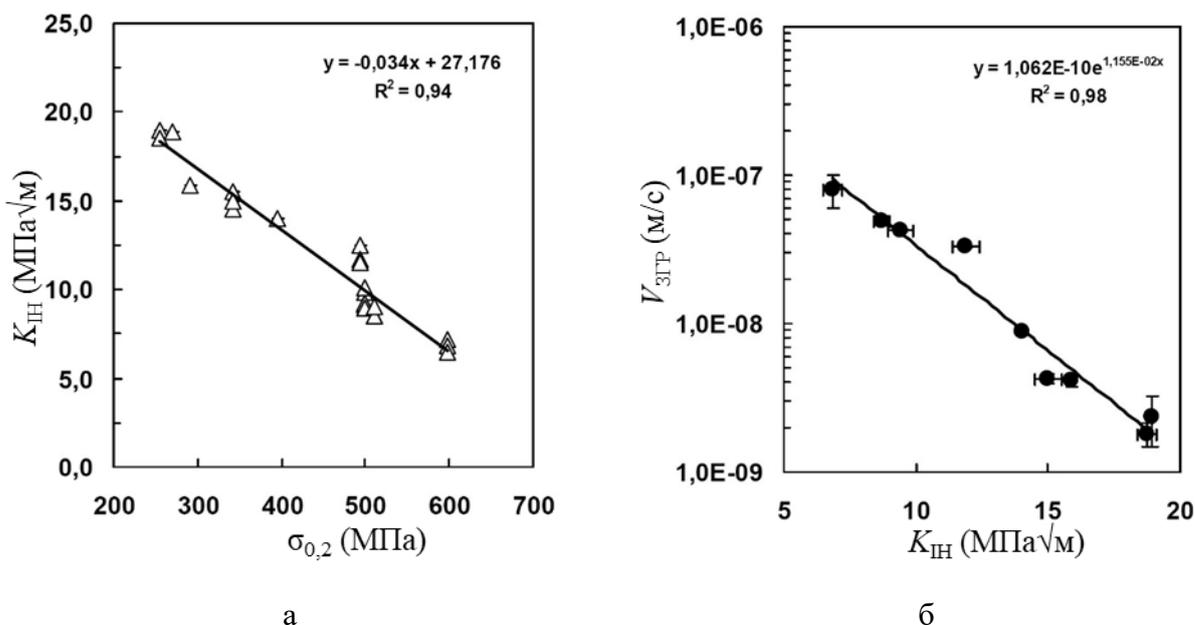


Рисунок 1.20 - Зависимости  $K_{II}$  от  $\sigma_{0,2}$  (а) и скорости ЗГР от  $K_{II}$  (б) для труб давления из сплава Zr-2,5Nb при 250 °С [106]

Результаты для зависимости скорости ЗГР от величины отношения текстурных параметров Кернса в радиальном и тангенциальном направлениях  $f_R/f_T$  приведены на рисунке 1.21. Видно, что скорость ЗГР в логарифмических координатах линейно снижается с увеличением значения  $f_R/f_T$  независимо от состава и структуры сплава.

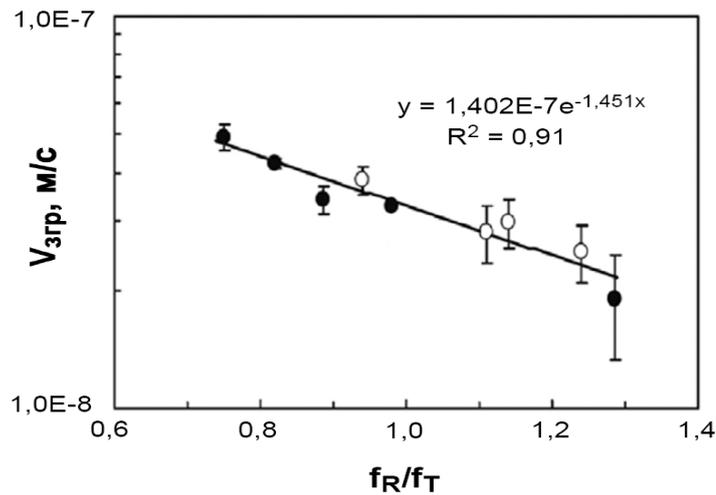


Рисунок 1.21 – Зависимость скорости ЗГР от текстуры труб давления из сплавов циркония: ● – Zr-2,5Nb; ○ – Э635 [106]

Зависимость  $K_{II}$  от текстуры известна только для сплава Zr-2,5Nb [106,125]. Результаты определения значений  $K_{II}$  на образцах близкого уровня прочности ( $\sigma_{0,2}=494-519$  МПа) показывают существенное различие указанных зависимостей для сплавов Zr-2,5Nb и Э635 (рисунок 1.22а). Это объясняется различием в уровне вязкости разрушения этих сплавов. Если построить зависимость  $K_{II}$  от параметра  $dJ/da$  для образцов, приведенных на рисунке 1.22а, то с возрастанием в трубах давления параметра  $dJ/da$  от 220 до 360 МПа величина  $K_{II}$  практически линейно увеличивается с 6 до 9,5 МПа $\cdot\sqrt{м}$  (рисунок 1.22б) для осевого направления трещины в трубе.

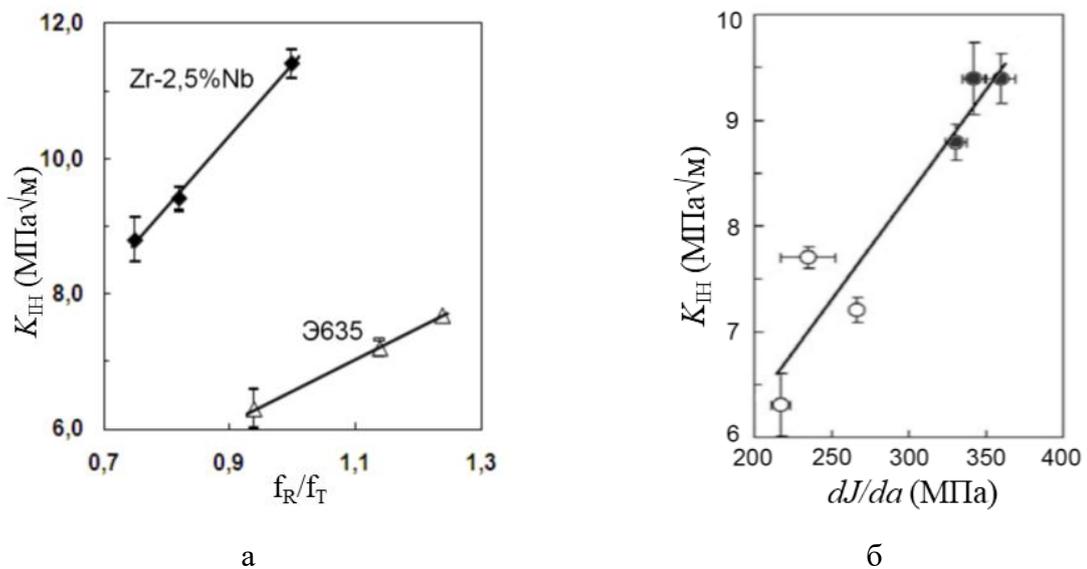


Рисунок 1.22 – Зависимость  $K_{II}$  при 250 °С от текстуры труб давления из сплавов циркония (а) и  $K_{II}$  от параметра вязкости разрушения  $dJ/da$  материала этих труб (б): ● – Zr-2,5Nb; ○ – Э635 [106]

Влияние прочности на скорость ЗГР показано и на температурных зависимостях  $V_{ЗГР}$  для необлучённых экспериментальной оболочечной трубы и трубы давления из сплава Zr-2,5Nb (см. рисунок 1.23) [126]. Конечная термообработка трубы давления и оболочечной трубы была одинаковой - 400 °С, 24 ч. Как видно из рисунка 1.23, для сплава Zr-2,5Nb температурные зависимости скорости ЗГР в осевом направлении оболочечной трубы, имеющей радиальную текстуру ( $f_R=0,60$ ,  $f_T=0,35$ ,  $f_L=0,05$ ), и трубы давления с тангенциальной текстурой ( $f_R=0,38$ ,  $f_T=0,57$ ,  $f_L=0,05$ ) подобны. Энергии активации в формуле для температурной зависимости скорости ЗГР для материала трубы давления и для экспериментальной оболочечной трубы составляют 43,8 и 42,7 кДж/моль, соответственно [126].

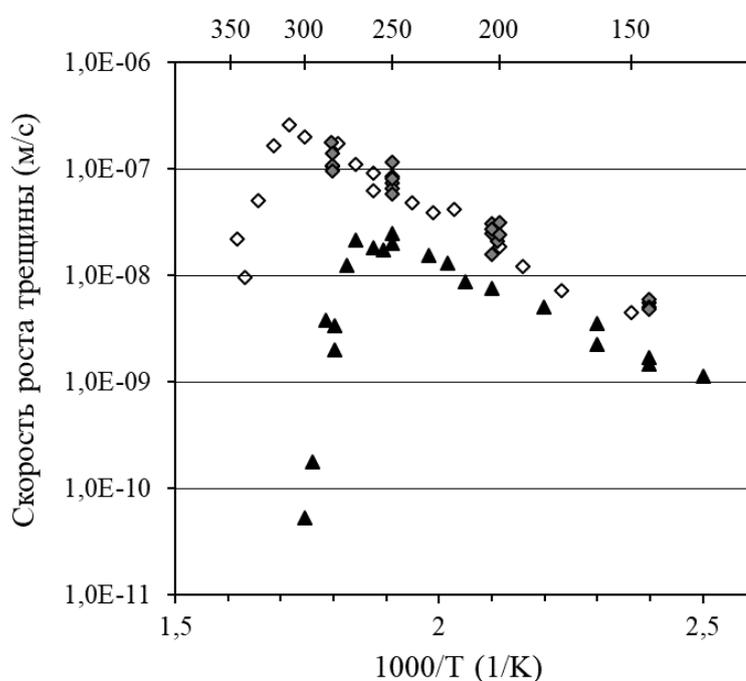


Рисунок 1.23 – Сравнение температурных зависимостей скорости ЗГР для сплава Zr-2,5Nb в оболочечной трубе ( $\blacktriangle$ ) и трубе давления ( $\diamond, \blacklozenge$ ) [126]

Наблюдаемое различие этих зависимостей связано, в первую очередь, с различием в прочности материала труб. Для оболочечной трубы предел прочности в направлении нормали к плоскости растрескивания при 250 °С составляет 495 МПа. А для материала стандартной трубы давления CANDU предел прочности при 250 °С равен 627 МПа [127]. Для экспериментальной оболочечной трубы максимальная температура ( $T_{max}$ ), при которой скорость ЗГР отклоняется от уравнения Аррениуса и начинает резко снижаться, составляет 265 °С, а отсутствие растрескивания наблюдается при 300 °С ( $T_{ВТП}$ ) и выше. Для трубы давления эти температуры составляют 310 °С и 350 °С, соответственно. Таким образом, с

уменьшением прочности сплава Zr-2,5Nb скорость ЗГР, а также параметры  $T_{\max}$  и  $T_{\text{ВТП}}$  снижаются. Свой вклад в снижение скорости ЗГР, помимо прочности, вносит и радиальность текстуры оболочечной трубы, что следует из данных, представленных на рисунке 1.21.

Для получения корректной зависимости  $K_{\text{IH}}$  от прочности циркониевых материалов необходимо в экспериментах соблюдать условие линейно-упругой механики разрушения по состоянию плоской деформации в вершине трещины, что сложно реализовать на образцах с низкой прочностью, особенно для тонкостенных оболочек. Поэтому публикации с такими данными отсутствуют или содержат противоречивые сведения [128].

### Облучение

Наиболее представительные результаты по влиянию нейтронного облучения на параметры ЗГР для циркониевого материала получены для труб давления CANDU из сплава Zr-2,5Nb в состоянии после холодной деформации и снятия напряжений [20,116,129]. Облучение труб давления осуществлялось при температурах в диапазоне 250-290 °С. Наводороживание образцов проводилось газофазным способом перед облучением [116] или электролитическим способом после облучения [20,116] до концентраций, необходимых для реализации ЗГР в испытаниях.

На рисунке 1.24 показано полученная в [116] зависимость величины  $K_{\text{IH}}$  от флюенса облучения для образцов трубы давления с радиальной трещиной. Испытания на ЗГР осуществлялись при температурах от 140 до 250 °С, так как величина  $K_{\text{IH}}$  слабо изменяется в данном температурном диапазоне [116].

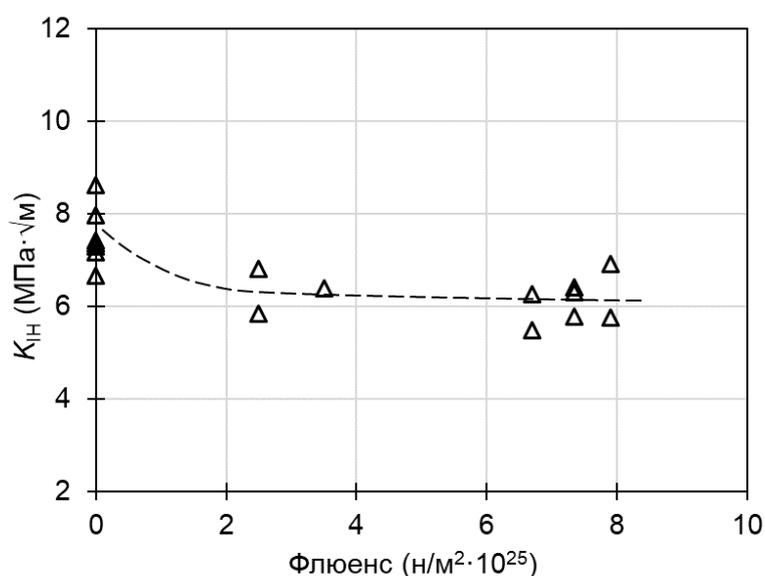


Рисунок 1.24 - Влияние флюенса облучения на  $K_{\text{IH}}$  для трубы давления CANDU из сплава Zr-2,5Nb [116]

Похожие результаты для  $K_{IH}$  приведены и в [129]. При этом по оценкам авторов данной работы облучение до флюенса  $3 \times 10^{24}$  н/м<sup>2</sup> и выше, понижает значение  $K_{IH}$  примерно на 30 %. Аналогичное снижение  $K_{IH}$  получено для оболочек из сплава Zircaloy-2 в результате облучения твэлов в энергетическом реакторе до выгорания 34-36 МВт·сут/кгU [25].

На рисунке 1.25 приведена зависимость радиальной скорости роста трещины в трубе давления от флюенса нейтронов при температуре 240 °С [129]. Видно, что облучение увеличивает  $V_{ЗГР}$  на порядок с эффектом насыщения после флюенса  $(5-10) \times 10^{25}$  н/м<sup>2</sup>, когда прочностные характеристики трубы давления тоже вышли на насыщение (предел текучести вырос в 1,35 раза [116]). Таким образом, дополнительно подтверждается зависимость скорости роста гидридной трещины от прочности циркониевого материала.

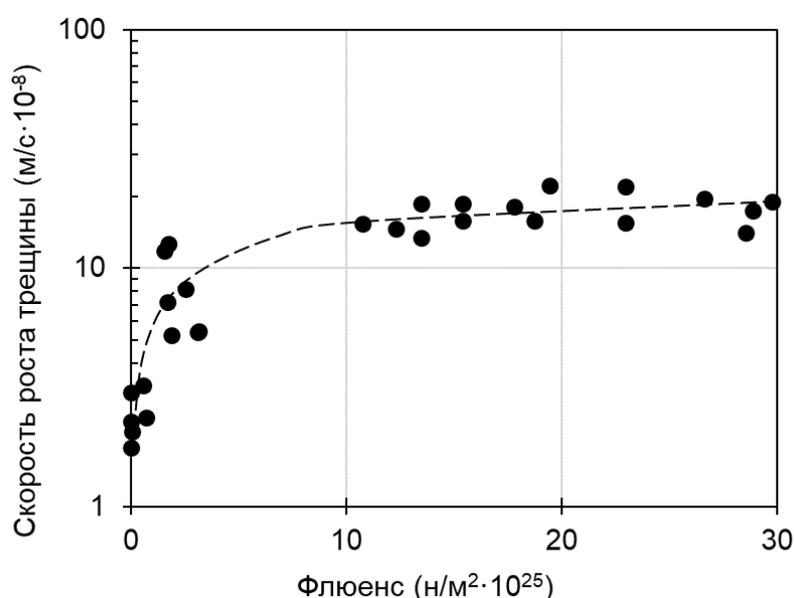


Рисунок 1.25 - Влияние флюенса облучения на скорость роста трещины ЗГР при 240 °С для трубы давления CANDU из сплава Zr-2,5Nb [129]

Возрастание скорости роста трещины ( $V_{ЗГР}$ ) под облучением также наблюдается и на её температурной зависимости. Например, на рисунке 1.26 показаны результаты измерения скорости распространения трещин ЗГР в осевом направлении труб давления из сплава Zr-2,5Nb без облучения и после облучения до флюенса  $3,5 \times 10^{25}$  н/м<sup>2</sup> [20].

Для необлучённого состояния трубы давления (см. рисунок 23)  $T_{max}$  составляет 310 °С,  $T_{ВТП}$  – 350 °С, а в облучённом состоянии эти температуры возрастают до значений 325 °С и 365 °С соответственно. Смещение  $T_{max}$  и  $T_{ВТП}$  за счёт облучения по сравнению с необлучённым состоянием материала в сторону более высоких температур, в данном случае

на 15 °С, объясняется также эффектом упрочнения. Сдвиг температур в сторону более высоких значений мог быть и больше, если бы флюенс облучения достиг величины более  $(5-10) \times 10^{25}$  н/м<sup>2</sup>, когда  $V_{ЗГР}$  выходит на максимум (как на рисунке 1.25). Помимо этого, в [20] показано, что предел текучести облучённого материала снизился на ~10 % из-за отжига радиационных дефектов в результате гомогенизирующей термической обработки, предусмотренной процедурой электролитического наводороживания, что не позволило проявиться максимальному эффекту влияния облучения на увеличение  $T_{ВТП}$ .

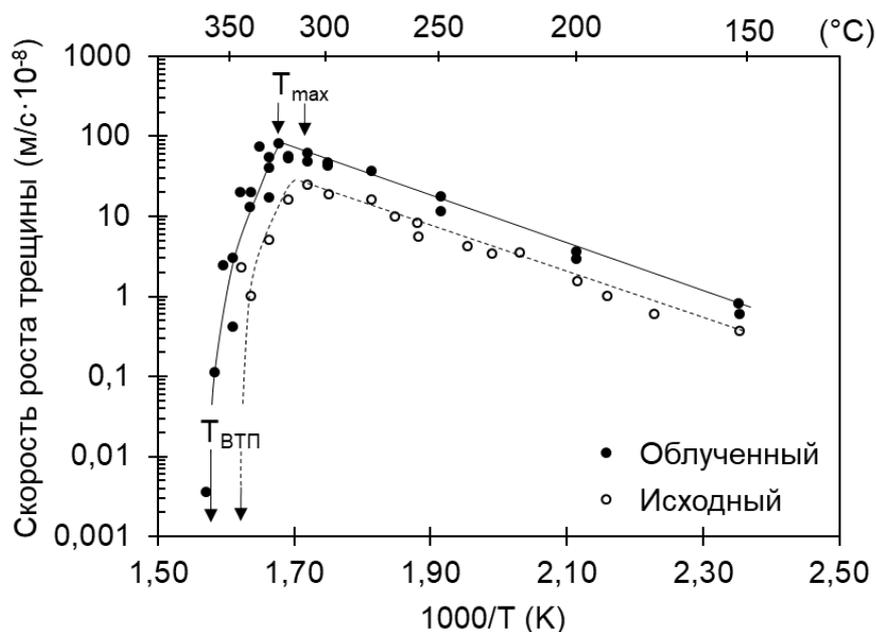


Рисунок 1.26 - Зависимость осевой скорости роста трещины ЗГР от температуры для трубы давления из сплава Zr-2,5Nb [20]

По-видимому, наиболее реалистичная оценка возрастания  $T_{ВТП}$  за счёт облучения по сравнению с необлучённым материалом приведена в [130], где представлены результаты экспериментов на оболочках твэлов с выгоранием 70 МВт·сут/кгU из сплава ZIRLO стандартного состава в состоянии CWSR. Величина прироста составила 40 °С –  $T_{ВТП}$  увеличилась с 335 °С для необлучённой оболочки до 375 °С для оболочки в облученном состоянии (рисунок 1.27). При этом предел прочности при температуре 250 °С облучённой оболочки вырос в 1,32 раза по сравнению с необлучённой оболочкой – с 565 МПа для необлучённого состояния до 747 МПа для состояния после облучения (результаты испытаний кольцевых образцов) [130].

По опубликованным температурным зависимостям для скорости роста трещины ЗГР [17,20,22,130,131] видно, что каждый циркониевый сплав имеет свои специфические

значения  $T_{ВТП}$ ,  $T_{max}$  и максимальной  $V_{ЗГР}$ . При этом, чем выше прочность материала, тем выше значения указанных параметров.

Таким образом, можно констатировать, что нейтронное облучение, увеличивая до насыщения прочность циркониевого материала, приводит к снижению  $K_{И}$  на 30 %, увеличению  $V_{ЗГР}$  на порядок и повышению предельной температуры для растрескивания  $T_{ВТП}$  на 40 °С в сравнении с необлученным состоянием.

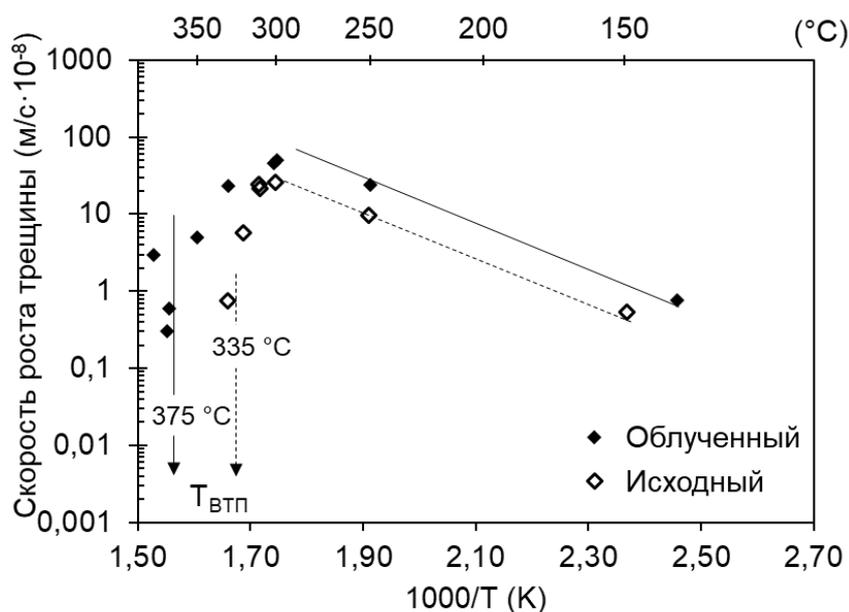


Рисунок 1.27 - Зависимость осевой скорости роста трещины ЗГР от температуры для оболочек твэлов из сплава ZIRLO [130]

#### 1.3.4 Взаимосвязь межбороздчатого расстояния в изломах и скорости роста трещины при ЗГР

Уникальной характеристикой прерывистого процесса ЗГР, зафиксированной впервые на изломах образцов труб давления из сплава Zr-2,5Nb, является своеобразный рельеф на поверхности гидридной трещины в виде регулярно расположенных бороздок, параллельных основному фронту трещины. Линии бороздок отчётливо наблюдаются в световом микроскопе под определённым углом наклона излома образца к направлению пучка света (рисунок 1.8б) [93,132], и по сути являются изображением скачкообразного продвижения трещины при ЗГР (рисунок 1.8а). Бороздки представляют собой вязкие прослойки разрушения матрицы сплава (рисунок 1.8в), разделяющие хрупкие участки разрушения квазисколом гидридов критического размера, периодически образующихся в вершине трещины за время инкубационного периода перед очередным проскакиванием

трещины при ЗГР.

Впервые основательные фрактографические исследования изломов с бороздками на поверхности трещин после ЗГР были выполнены на образцах труб давления из сплава Zr-2,5Nb [92]. По результатам этих исследований показано, что с увеличением температуры от 150 до 325 °С расстояние между бороздками в изломах образцов труб давления из сплава Zr-2,5Nb возрастает (рисунок 1.28). Такая закономерность увеличения межбороздчатого расстояния с температурой согласуется с сопутствующим возрастанием скорости роста трещины ЗГР, подчиняющейся соотношению Аррениуса, в том же температурном диапазоне, что было продемонстрировано на рисунке 1.14.

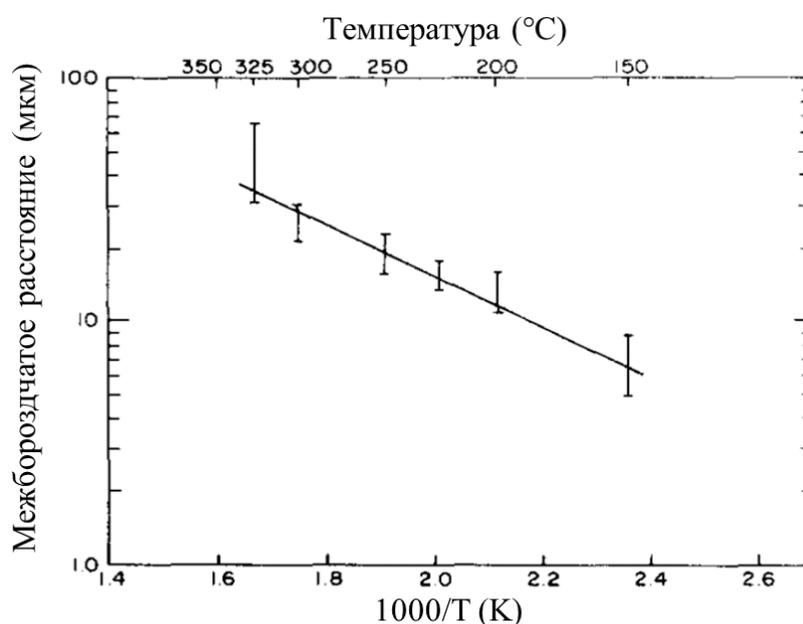


Рисунок 1.28 – Увеличение межбороздчатого расстояния с ростом температуры в испытаниях на ЗГР [92]

Аналогичное увеличение межбороздчатого расстояния с увеличением скорости роста трещины при возрастании температуры подтверждена в испытаниях на ЗГР труб давления из сплава Zr-2,5Nb двух уровней прочности, выполненных по проекту МАГАТЭ 1998-2002 [132,133]. В рамках этого проекта температурные зависимости скорости ЗГР и межбороздчатого расстояния для образцов труб давления из материала 1, соответствующего стандартной трубе давления CANDU с пределом текучести при 250 °С ~ 600 МПа, и материала 2, соответствующего трубе РБМК с обработкой ТМО-1 и пределом текучести при 250 °С ~ 500 МПа, определены в диапазоне от 144 до 283°С. Соответствующие результаты приведены на рисунках 1.29 и 1.30 [93]. В этом исследовании расстояния между бороздками вычислялись как средние значения по изломам не менее трёх образцов после испытаний для каждой температуры. Как видно из приведенных данных,

для материала труб с более низкой прочностью, имеющего меньшую скорость ЗГР в температурном диапазоне Аррениусовской зависимости (рисунок 1.29), наблюдается большая величина межбороздчатого расстояния (рисунок 1.30) [93].

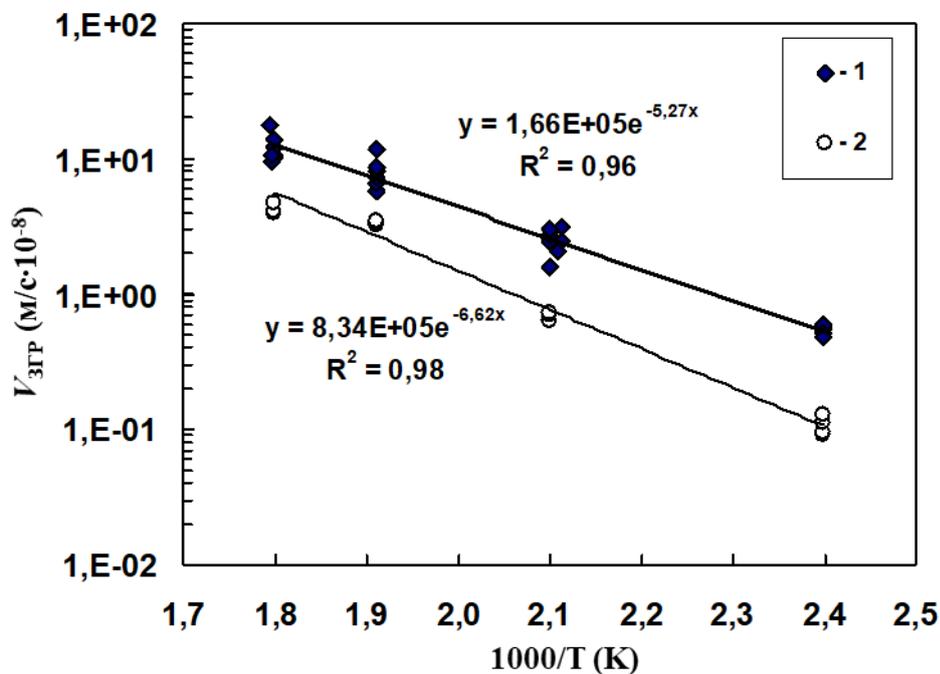


Рисунок 1.29 – Температурная зависимость скорости ЗГР в диапазоне температур от 144 до 283 °С для образцов 1 и 2 из сплава Zr-2,5%Nb с различным уровнем прочности ( $\sigma_{0,2} \sim 600$  и 500 МПа при 250 °С соответственно для образцов 1 и 2) [93]

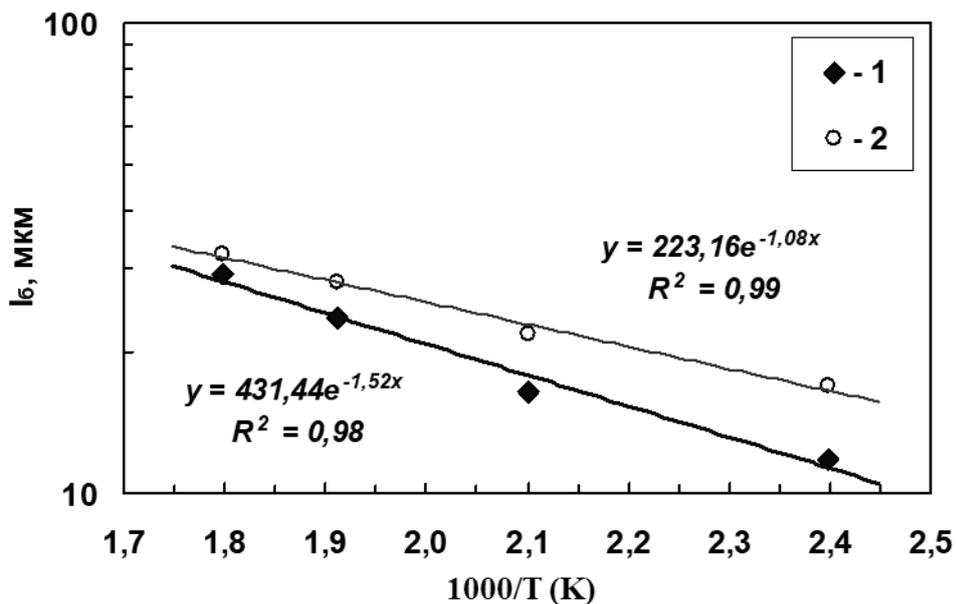
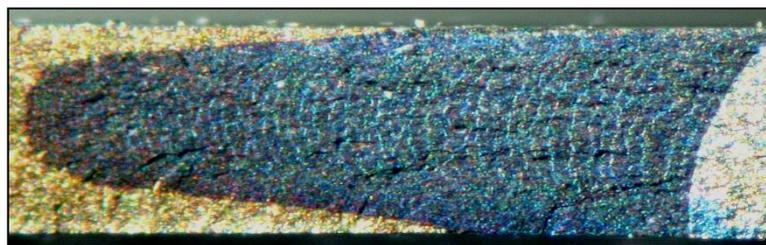
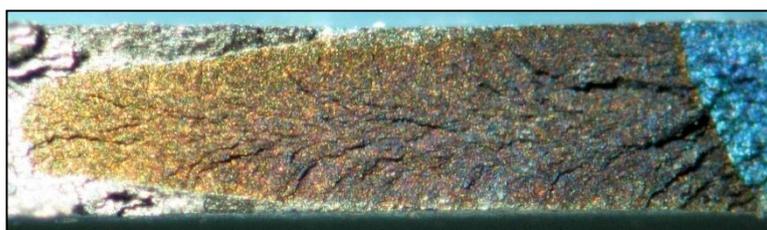


Рисунок 1.30 – Температурная зависимость расстояния между бороздками ( $l_b$ ) в изломах образцов 1 и 2 из сплава Zr-2,5%Nb после испытаний на скорость ЗГР (рисунок 1.30) [93]

Бороздки отчётливо наблюдаются с помощью стереомикроскопа в изломах трещин ЗГР образцов оболочки из сплава Zr-2,5Nb (рисунок 1.31а) [126], а вот в изломах трещин ЗГР образцов оболочек из сплава Zircaloy-4 они практически не обнаружены (рисунок 1.31б) [126,131,134]. Предполагается, что возможной причиной этого является малый критический размер зоны гидридного скопления в вершине трещины, вследствие чего разрешающей способности светового микроскопа недостаточно для их выявления и необходимо применение более чувствительных средств наблюдения [126,131].



а



б

Рисунок 1.31 – Бороздки на поверхности разрушения по механизму ЗГР в образце оболочечной трубы из сплава Zr-2,5Nb (а) и их отсутствие в образце оболочечной трубы из сплава Zircaloy-4 (б) [126]

#### 1.4 Примеры ЗГР в циркониевых конструктивных элементах

Впервые разрушение вследствие развития ЗГР наблюдалось в 1972 г. на экспериментальном твэле с оболочкой и заглушкой из сплава Zr-2,5Nb [135]. Трещины образовались после нескольких месяцев старения при комнатной температуре в зоне термического влияния от сварного соединения оболочки с заглушкой, из-за наличия в этой области остаточных растягивающих напряжений.

Позже в 1974-75 г.г. были обнаружены течи в 20 (из 780) трубах давления из сплава Zr-2,5Nb в реакторах CANDU энергоблоков 3 и 4 АЭС «Пикеринг» [136,137]. Причиной растрескивания также стали высокие остаточные напряжения (до 700 МПа) в местах развальцовки обкаткой механических соединений труб давления с переходниками из стали.

Трещины зарождались на внутренней поверхности труб давления и росли по механизму ЗГР в радиальном и осевом направлениях в виде серий полос (рисунок 1.32). Рост трещины происходил при низких температурах во время остановок реактора. При последующем выводе реактора на мощность и повышении температуры труб выше 250 °С, растрескивание останавливалось, так как водород, концентрация которого в материале не превышала 15 ppm, находился в твёрдом растворе. Каждая полоска на поверхности разрушения соответствовала очередной остановке реактора и определённому периоду работы на мощности, поэтому полоски имеют различные оттенки и ширину (более ранние полоски сильнее окислены). Такая картина объясняется зависимостью скорости ЗГР от температуры, до которой охлаждалась труба во время остановки реактора, и различиями в продолжительности охлаждения [138]. Остаточные напряжения и растрескивание по механизму ЗГР были также причиной разгерметизации труб топливных каналов и каналов системы управления защитой в реакторах РБМК [139].

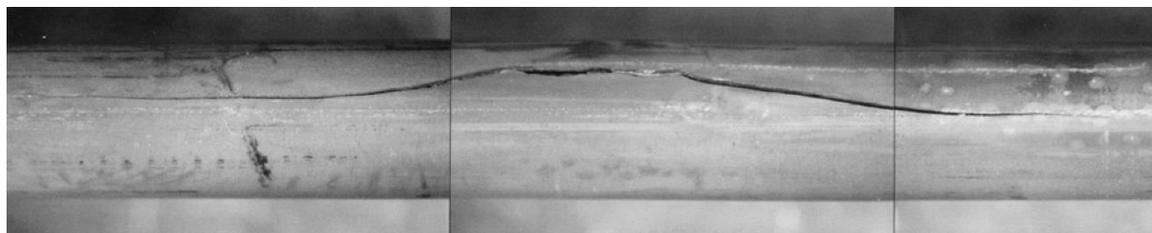


Рисунок 1.32 - Внешний вид излома сквозной трещины, образованной по механизму ЗГР, в трубе давления CANDU из сплава Zr-2,5Nb (распространение трещины от внутренней к внешней поверхности, снизу-вверх) [133]

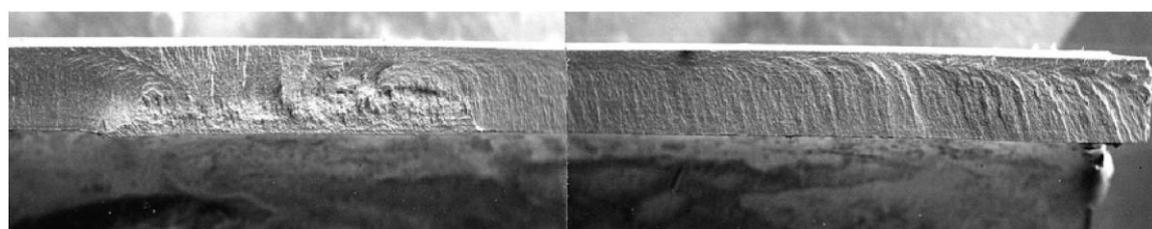
Возникновение ЗГР в трубах давления привело к началу большой исследовательской программы в канадской атомной энергетике и промышленности, результатом которой, в конечном итоге, стала разработка и последующее регулярное обновление технических требований для оценки целостности труб давления при эксплуатации в реакторах CANDU [140].

С ЗГР связывают также образование длинных осевых трещин на оболочках твэлов из сплава Zircaloy-2 при эксплуатации в реакторах BWR (рисунок 1.33 а) [9, 25]. Длинные осевые трещины являются вторичными дефектами, образующимися в результате наличия первичных дефектов [9-13,25,141], появившихся вследствие PCI или дебризного фреттинга, либо присутствующих в оболочке до эксплуатации в виде технологических дефектов типа острых микротрещин. Первичный сквозной дефект не является столь опасным, однако, попадание через него воды (влаги) под оболочку, в конечном счете, приводит к серьезной

деградации твэла. В результате в реакторной воде увеличивается содержание продуктов деления топлива, приводя к неприемлемому уровню радиации на атомной станции. Обобщённый анализ случаев разрушения твэлов в реакторах BWR с образованием длинных осевых трещин в оболочках приведен в исследовании [13].



а



б

Рисунок 1.33 – Длинная осевая трещина в оболочке твэла BWR из сплава Zircaloy (а) с характерным узором в изломе (б) [11,25]

Послереакторные исследования [10,25] показали, что длинные осевые трещины связаны с выделением гидридов. Изломы имеют характерный узор, напоминающий наличие бороздок, с фронтом трещины около внешней поверхности оболочки (рисунок 1.33 б) [11,25].

Кроме того, механизм ЗГР был идентифицирован как ответственный за радиальное растрескивание по толщине стенки оболочки, начинавшееся с внешней поверхности, в эксперименте при скачке мощности твэла BWR с высоким выгоранием топлива (рисунок 1.34) [14].

Факты разгерметизации твэлов в реакторах BWR, связанные с возможной реализацией механизма ЗГР циркониевых оболочек, свидетельствуют о необходимости учитывать в техническом проектировании твэлов вероятность такого разрушения при эксплуатации и последующем сухом хранении отработавших ТВС. Также, несмотря на то, что случаев ЗГР оболочек твэлов при эксплуатации в реакторах ВВЭР(PWR) к настоящему времени не обнаружено, необходимо оценить возможность реализации этого явления и существующие запасы для реакторов этого типа.

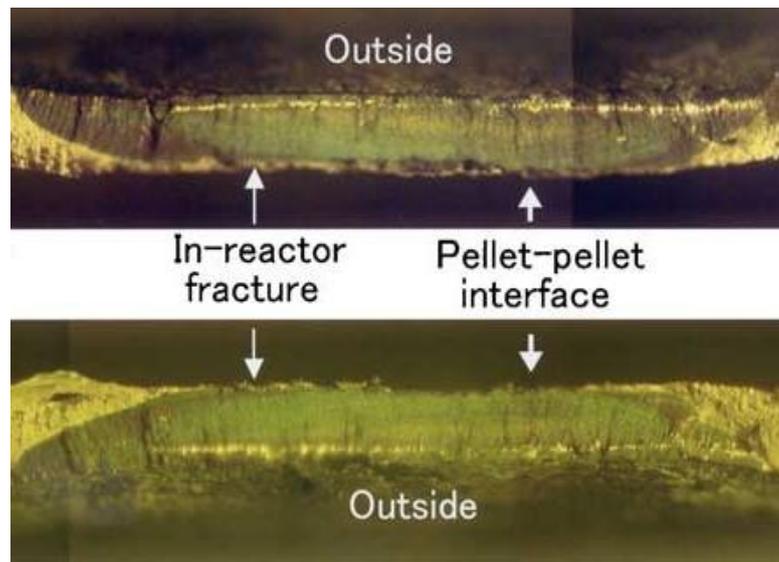


Рисунок 1.34 - Радиальное растрескивание оболочки по механизму ЗГР [14]

Актуальность этой проблемы побудила МАГАТЭ организовать два международных проекта координированных исследований «Замедленное гидридное растрескивание топливной оболочки из циркониевого сплава» (2005-2009 г.г.) и «Оценка условий для вызванной водородом деградации циркониевых сплавов при эксплуатации и хранении топлива» (2011-2015 г.г.). Целью проектов было распространение среди стран-участниц методик испытаний на ЗГР и проведение сравнительных экспериментов на оболочках твэлов, в том числе для реакторов PWR, с определением скорости роста трещины (первый проект) [142] и порогового коэффициента интенсивности напряжений (второй проект) [143]. Во втором проекте принимал участие автор данной диссертационной работы.

### 1.5 Испытания на ЗГР в лабораторных условиях

Проведение лабораторных испытаний на ЗГР требует создания условий, максимально способствующих проявлению данного механизма разрушения:

1) *Испытываемый образец должен содержать водород в достаточном количестве для инициирования разрушения по механизму ЗГР*

В разделе 1.3.3 показано, что для достижения максимальной скорости ЗГР и для образования гидридов при температуре эксперимента, содержание водорода в образцах должно превышать предел растворимости TSSP.

Данное условие выполняется путем введения дозированного количества водорода в образец с использованием общепринятых методов наводороживания. Наибольшее распространение получили метод электролитического наводороживания, заключающийся

в осаждении водорода путем электролиза с образованием на поверхности образца гидрида с последующим гомогенизирующим отжигом [144,145], а также метод газофазного насыщения с использованием установки типа Сивертса [145]. К преимуществам электролитического наводороживания относят возможность насыщения водородом сравнительно толстостенных образцов типа труб давления толщиной 4-5 мм, обладающих сравнительно малой удельной площадью поверхности. Однако, количество вводимого водорода при этом ограничено его растворимостью при температуре гомогенизирующего отжига – она не должна превышать температуру финишной термообработки, применяемой при изготовлении изделия. Метод газофазного насыщения чаще применяется для тонкостенных образцов, например, для оболочек твэлов, и имеет преимущество перед электролитическим по точности и отсутствию ограничений на количество поглощаемого водорода.

В настоящей работе для насыщения водородом образцов от оболочек твэлов использовался газофазный метод, а для образцов труб давления применялся электролитический метод.

*2) Выход на температурный режим должен быть осуществлен с учетом температурной зависимости скорости ЗГР*

В разделе 1.3.3 показано, что пересыщение твердого раствора водорода в циркониевом сплаве является одной из движущих сил процесса ЗГР – с увеличением степени пересыщения увеличивается скорость ЗГР. В практике испытаний на ЗГР такое состояние достигается путем нагрева образца до температуры на 10-15 °С выше кривой TSSD (рисунок 1.1), изотермической выдержки при этой температуре для полного растворения гидридов и медленным охлаждением до температуры испытаний. Рекомендованный в рамках международных проектов МАГАТЭ [133,142,143] температурный сценарий выхода на режим испытания, схематично представлен на рисунке 1.35.

*3) Образец должен иметь острый дефект*

Как показано в разделе 1.3.1, механизм ЗГР реализуется только при наличии в материале острого дефекта (микротрещины). В лабораторных условиях острый дефект в наводороженном образце, как правило, наводится в виде усталостной трещины с использованием машины для динамических испытаний [17,133,142,143]. Значительно реже в качестве острого дефекта может выступать надраз [24,25] или трещина, возникшая при разрушении хрупкого слоя гидридов.

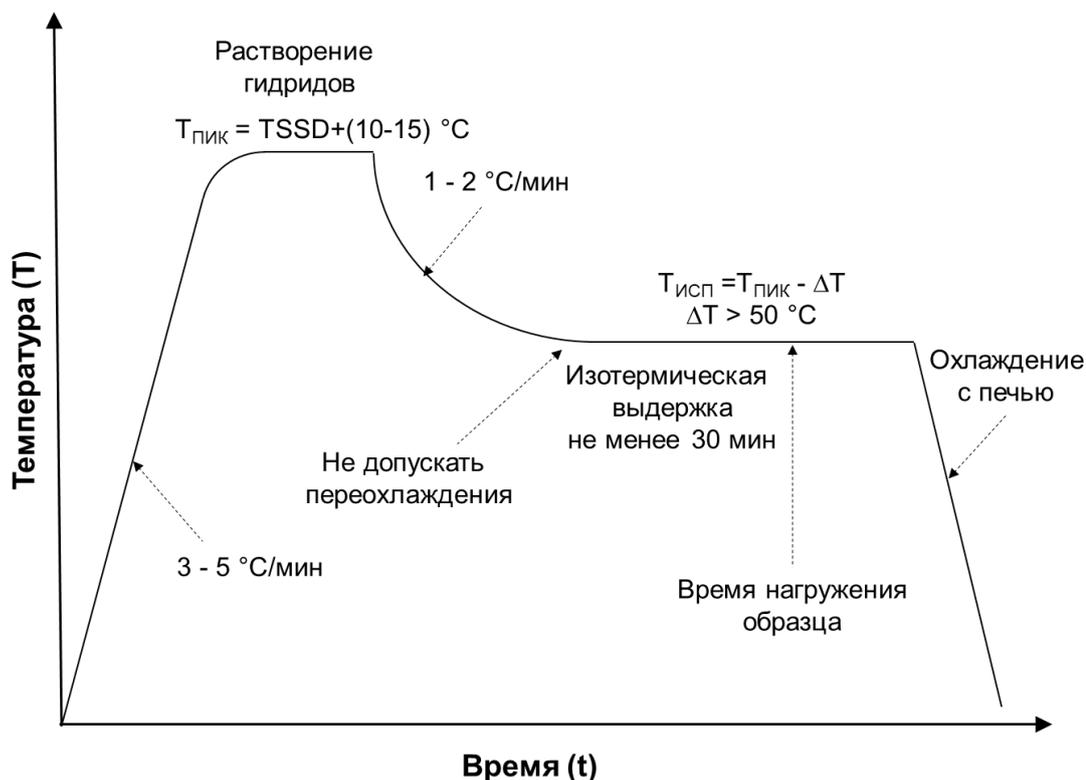


Рисунок 1.35 – Схема выхода на температурный режим перед испытаниями на ЗГР [133]

4) *Схема нагружения образца должна обеспечивать контролируемую величину  $K_I$  в вершине острого дефекта*

Особое внимание при испытании на ЗГР уделено схеме нагружения и, соответственно, геометрии образцов.

Для испытаний образцов труб давления с трещиной в осевом направлении используются компактные образцы [133,146], для которых существует стандартизированная процедура испытания на вязкость разрушения с нагружением образца по принципу внецентренного растяжения ASTM E399. Образцы труб давления с трещиной в радиальном направлении испытываются с использованием СВ (Cantilever Beam) образцов по схеме нагружения консольной балки [104,116]. Величина  $K_I$  рассчитывается для указанных образцов исходя из предположений линейно-упругой механики разрушения.

Специфика испытаний тонкостенных оболочек твэлов (толщиной 0,57-0,68 мм для реакторов PWR и ВВЭР) обусловлена их малыми размерами, из-за которых невозможно изготовить образец в соответствии с ASTM E399. Разными исследователями были опробованы испытания образцов, нагруженных различным способом, с трещинами ЗГР как в радиальном (R), так и в осевом (L) направлениях. На рисунке 1.36 приведены некоторые схемы нагружения, используемые при испытаниях на ЗГР.

Для радиального направления развития трещины:

- нагружение внутренним давлением с использованием установки, применяемой для испытаний оболочек внутренним давлением (burst test) [147] (рисунок 1.36а);
- нагружение по схеме трехточечного изгиба [148] (рисунок 1.36б).
- растяжение кольцевого образца с выращенной усталостной трещиной на наружной поверхности [128] (рисунок 1.36в);

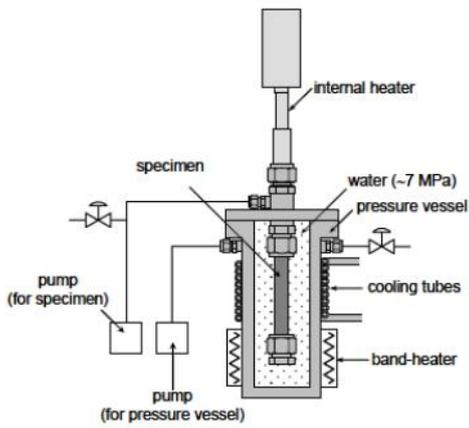
Для осевого направления развития трещины:

- одноосное растяжение вырезанного из оболочки твэла полукольцевого образца (half-ring specimen) с надрезом в центральной части (рисунок 1.36г) [24,25];
- одноосное растяжение образца с единичным надрезом на одной стороне [143] (рисунок 1.36д);
- нагружение по принципу внецентренного растяжения (рисунок 1.36е) [17,118,142,143].

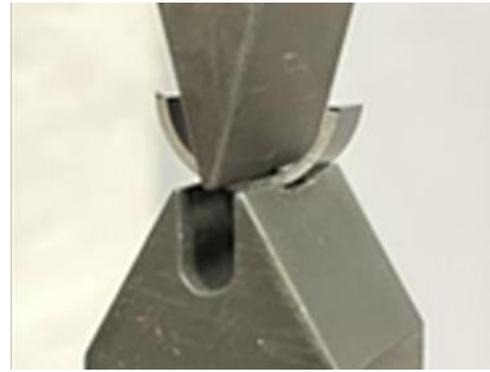
Различие применяемых схем нагружения затрудняет сопоставление результатов испытаний полученных разными методами на образцах из различных сплавов.

С целью выбора единого типа образца и способа его нагружения в испытаниях оболочек твэлов в рамках проекта координированных исследований МАГАТЭ 2005-2009 [142] была организована программа межлабораторных сличительных экспериментов по определению скорости ЗГР на оболочках из сплава Zircaloy-4. В качестве основного способа нагружения образца оболочки твэла был выбран PLT (Pin-Loading Tension) метод [149]. Выбор данного способа испытаний обусловлен тем, что, во-первых, принцип нагружения образца аналогичен используемому при испытаниях на ЗГР компактных образцов труб давления, и во-вторых, этот способ был успешно опробован при проведении испытаний на вязкость разрушения оболочек твэлов [150].

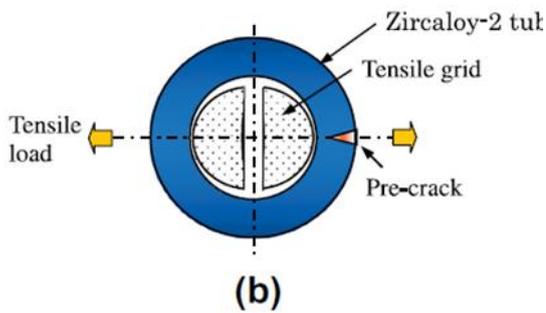
Описание PLT способа нагружения, используемого в настоящей работе при испытаниях образцов оболочек твэлов на ЗГР, приведено в главе 2.



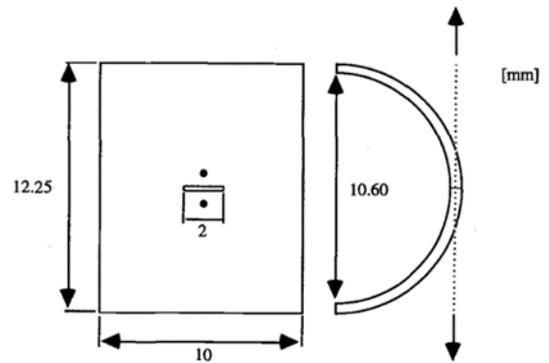
а) [147]



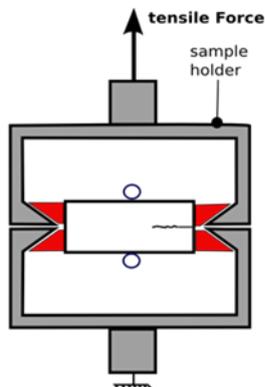
б) [148]



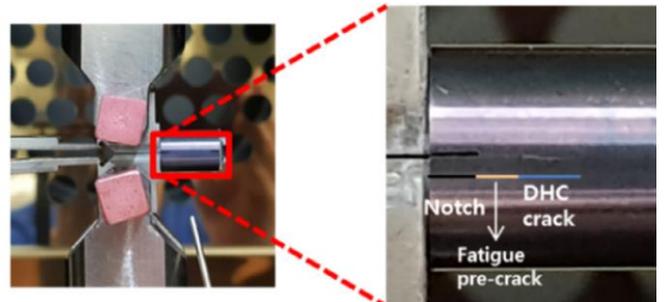
в) [128]



г) [24,25]



д) [143]



е) [118]

Рисунок 1.36 – Схемы нагружения тонкостенных трубчатых образцов, используемые при испытаниях на ЗГР оболочек ТВЭЛОВ

#### Испытания по определению $V_{ЗГР}$

В испытаниях на ЗГР для определения скорости роста трещины к образцу прикладывается нагрузка, которая должна обеспечить величину  $K_I$  в 2-3 раза превышающую пороговое значение  $K_{ИП}$ . Через время инкубационного периода ( $t_{инк}$ ), происходит старт роста трещины ЗГР, что фиксируется по показаниям параметров

испытательной системы. Пример диаграммы испытаний для определения скорости ЗГР в образце оболочки из сплава Zircaloy-4 приведен на рисунке 1.37 [142]. Представлены зависимости от времени показаний температуры, нагрузки и раскрытия трещины с ростом её длины.

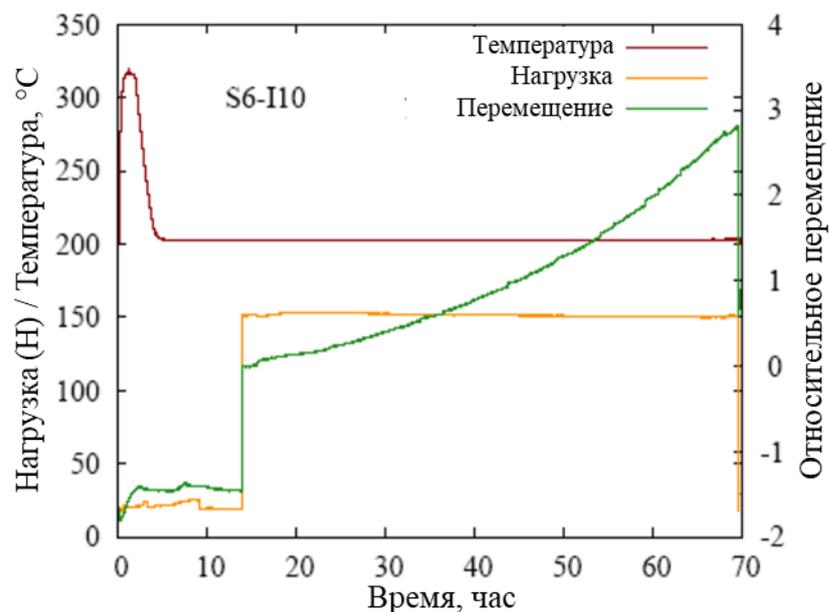


Рисунок 1.37 – Диаграмма истории испытания для определения скорости ЗГР в образце оболочки твэла PWR из сплава Zircaloy-4 при 200 °C; возрастание перемещения начинается после инкубационного периода около 60 мин [142]

По завершении испытания образец разламывается на две части, как правило, с использованием циклического нагружения для лучшего выделения контура трещины ЗГР и исключения её деформирования и повреждения при разломе. По результатам фрактографического анализа и измерения излома определяется длина трещины ЗГР и по следующей формуле вычисляется скорость её роста:

$$V_{\text{ЗГР}} = \frac{a_{\text{ЗГР}} \cdot 10^{-3}}{t \cdot 60} \quad (1.3)$$

где -  $V_{\text{ЗГР}}$  - скорость ЗГР, м/с;

$a_{\text{ЗГР}}$  – длина трещины ЗГР, мм;

$t$  – время между приложением и снятием нагрузки за вычетом инкубационного периода, мин

Сходимость результатов, полученных участниками проекта [142], при определении  $V_{\text{ЗГР}}$  на PLT образцах оболочек из сплава Zircaloy-4 оказалась достаточно высокой (рисунок 1.38) – значения скорости ЗГР получены в диапазоне  $(1,7 - 4,7) \times 10^{-8}$  м/с.

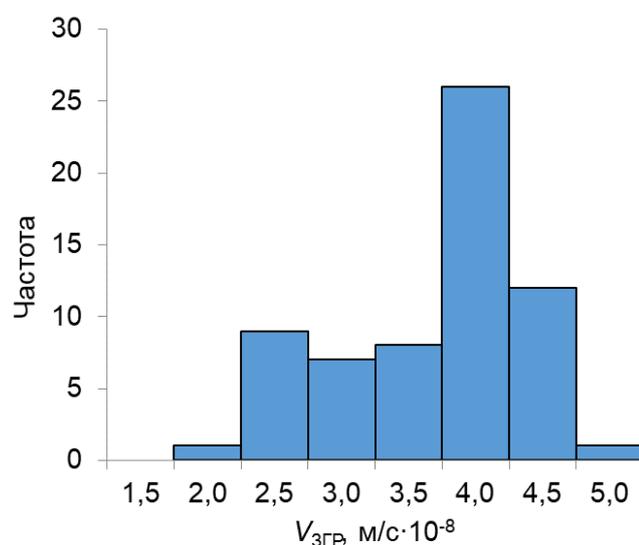


Рисунок 1.38 - Распределение данных по  $V_{ZGR}$  для сплава Zircaloy-4 при 250 °С полученных в рамках проекта МАГАТЭ 2005-2009 [142]

#### *Испытания по определению $K_{IH}$*

На момент начала настоящей работы в практике испытаний по определению  $K_{IH}$  использовались следующие методы [17,143,151]:

- Метод многих образцов с построением зависимости скорости ЗГР от величины  $K_I$ ;
- Метод снижения нагрузки;
- Метод повышения нагрузки.

Описание и особенности вышеуказанных методов приведены в главе 3 настоящей работы. Результаты по определению значений  $K_{IH}$ , полученные участниками проекта МАГАТЭ 2011-2015 с использованием данных методов (рисунок 1.39), лежат в диапазоне  $(2 - 10) \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$ ,  $\text{СКО} = 1,7 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$  [151].

Разброс результатов по  $K_{IH}$  связан с методическими сложностями определения этого параметра тремя указанными методами, а также с различиями в используемом оборудовании для испытаний и подготовке образцов участниками проекта. Следовательно, выбор и отработка методики испытаний на ЗГР имеют важное значение для получения корректных результатов.

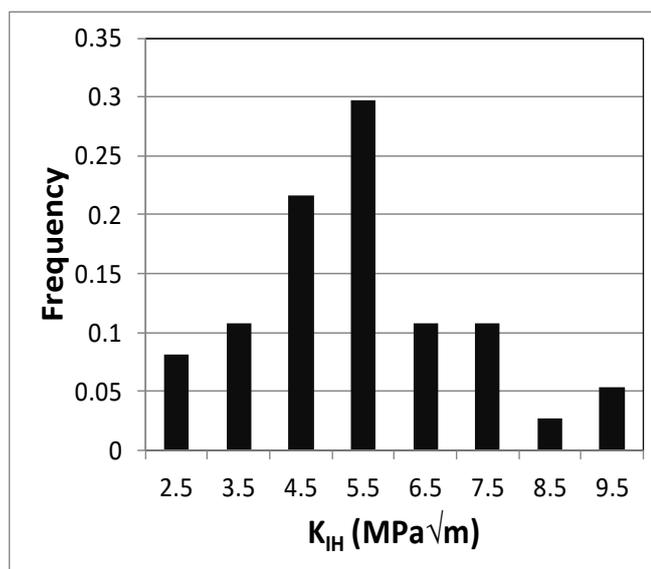


Рисунок 1.39 - Распределение данных по  $K_{IH}$  для сплава Zircaloy-4 при 250 °C полученных в рамках проекта МАГАТЭ 2011-2015 [151]

## 1.6 Выводы по главе 1

1. Низкая растворимость водорода в сплавах циркония, его диффузионная подвижность и склонность к ориентированному выделению хрупкой гидридной фазы под действием растягивающих напряжений являются определяющим фактором зависящего от времени механизма разрушения - Замедленного Гидридного Растрескивания. Примеры растрескивания циркониевых конструктивных элементов в реакторах, свидетельствуют, что возможность реализации ЗГР необходимо принимать во внимание в техническом проектировании твэлов для обоснования работоспособности материала оболочки при эксплуатации в реакторе и в условиях сухого хранения отработавшего ядерного топлива.

2. Рассмотрены механизм ЗГР и характерные черты рельефа поверхности гидридной трещины, свидетельствующие о её прерывистом росте. Показано, что для проявления ЗГР в циркониевом компоненте необходимо выполнение определённых условий по содержанию водорода, температуре и напряженному состоянию в вершине острого дефекта.

Приведены основные параметры ЗГР - пороговый коэффициент интенсивности напряжений в вершине трещины ( $K_{IH}$ ) и скорость стабильного роста трещины ( $V_{ЗГР}$ ). Дано описание модельных представлений для их прогнозного расчёта. Показана особенность температурной зависимости  $V_{ЗГР}$ , подчиняющейся соотношению Аррениуса до определённой температуры ( $T_{max}$ ), при которой скорость ЗГР имеет максимальное значение. Выше  $T_{max}$  начинается резкое снижение  $V_{ЗГР}$  с приближением к верхнему температурному

пределу ( $T_{ВТП}$ ), когда скорость роста трещины ЗГР близка к нулю. Одновременно с резким снижением  $V_{ЗГР}$  значительно возрастает  $K_{ИП}$ . Выше  $T_{ВТП}$  циркониевый материал проявляет иммунитет к ЗГР.

3. Проанализировано влияние на параметры ЗГР внутренних и внешних факторов, к которым соответственно относятся характеристики циркониевого материала (легирующий состав, структурно-фазовое состояние, текстура, свойства) и условия (наводороживание, температура, напряжения, облучение), в которых этот материал находится. Ключевыми являются температура растрескивания и способ ее достижения (нагрев или охлаждение), а также прочность и вязкость разрушения материала. Важное значение имеет и текстура.

Нейтронное облучение, увеличивая до насыщения прочность циркониевого материала, приводит, в сравнении с необлученным состоянием, к снижению  $K_{ИП}$  на 30 %, увеличению  $V_{ЗГР}$  на порядок, и повышению на 40°C предельной температуры для растрескивания  $T_{ВТП}$ , выше которой ЗГР не проявляется.

3. К началу настоящей работы в литературе имелось ограниченное количество данных по характеристикам  $K_{ИП}$  и  $V_{ЗГР}$  для оболочек твэлов из сплавов системы Zircaloy. Экспериментальные данные для оболочек из сплавов других систем легирования, к которым относятся и отечественные сплавы типа Э110 и Э635, фактически отсутствовали, за исключением единичной информации по зарубежному сплаву ZIRLO, представленной на международной конференции [130], но в итоге не опубликованной в сборнике. Связано это, в том числе, с методической сложностью испытаний на ЗГР тонкостенных трубчатых образцов, что приводит к разбросу получаемых результатов, особенно, для  $K_{ИП}$ .

Таким образом, анализ литературных данных, касающихся изучения характерных особенностей деградации циркониевых конструктивных элементов по механизму ЗГР, и факторов, влияющих на склонность к его проявлению, показал необходимость проведения дополнительных экспериментов для определения в рамках одного метода основных параметров ЗГР и их температурных зависимостей для оболочек твэлов из сплавов циркония трёх разных систем легирования, и тем самым позволил сформулировать цели и задачи настоящей диссертационной работы.

## Глава 2. Материалы и методы исследований

### 2.1 Исследуемые материалы и их характеристики

В качестве материала для исследований использовались образцы оболочечных труб с наружным диаметром  $\varnothing$  9,5 мм и толщиной стенки 0,57 мм из отечественных сплавов Э110опт и Э635М, изготовленные в АО ЧМЗ (г. Глазов), и из сплава Zircaloy-4 производства фирмы Sandvik (Швеция) (таблица 2.1). Трубы изготовлены по соответствующим техническим спецификациям для номенклатуры оболочек твэлов реакторов PWR.

Таблица 2.1 – Легирующий состав, структура и текстура исследуемых материалов

Сплав, (партия), состояние труб	Э110опт, (партия 5060-11), CW	Э635М, (партия 369-04), CW	Zircaloy-4, (партия 407130), CWSR
Легирующий состав (% масс)			
Ниобий (Nb)	1,05	0,79	-
Олово (Sn)	-	0,80	1,31
Железо (Fe)	0,045	0,32	0,21
Хром (Cr)	-	-	0,11
Кислород (O)	0,088	0,080	0,136
Легирующие элементы в твёрдом растворе (% масс)			
Состав и общее количество	Nb+O+Fe = 0,4	Nb+Sn+Fe+O = 1,19	Sn+Fe+Cr+O = 1,47
Структурно-фазовое состояние			
$\alpha$ -Zr зерна	Вытянуты в осевом направлении; начало рекристаллизации		
Выделения второй фазы	Частицы $\beta$ -Nb	Интерметаллиды Zr(Nb,Fe) <sub>2</sub>	Интерметаллиды Zr(Fe,Cr) <sub>2</sub>
Текстура (параметры Кернса)			
$f_R$	0,59	0,57	0,58
$f_T$	0,35	0,38	0,37
$f_L$	0,06	0,05	0,05
$f_R/f_T$	1,68	1,5	1,57

Сплав Э110опт (системы Zr-Nb) является основным материалом тонкостенных (за счёт увеличения внутреннего диаметра) оболочек твэлов ВВЭР с увеличенной нагрузкой урана [152], и проходит опытно-промышленную эксплуатацию в качестве оболочек твэлов

ТВС-К в реакторах PWR на АЭС «Ringhals» (Швеция) [153]. Сплав Э635М (системы Zr-Nb-Sn-Fe) в качестве оболочек твэлов ВВЭР-1000 эксплуатировался на блоке 2 Балаковской АЭС до выгорания топлива 60 МВт·сут/кгU [154]. Кроме того, как материал оболочек экспериментальных твэлов PWR сплав Э635М, вместе с Э110опт, испытан в петле Халден реактора в условиях водно-химического режима (ВХР) с 10 ppm Li [155].

Оболочечная труба из сплава Zircaloy-4 (системы Zr-Sn-Fe) была в состоянии CWSR после конечного отжига 480 °С – 3,5 часа. Она же испытывалась автором в рамках участия в проекте МАГАТЭ 2011-2015 [143].

Оболочечные трубы из сплавов Э110опт и Э635М были изготовлены по единой технологической схеме. В производстве для оболочек твэлов трубы из сплавов Э110опт и Э635М подвергаются конечному отжигу для придания материалу рекристаллизованного структурного состояния (RXA). Прочность таких труб достаточно низкая (рисунок 2.1). Как следствие, инициировать ЗГР в испытаниях невозможно из-за притупления вершины усталостной трещины в образце под нагрузкой.

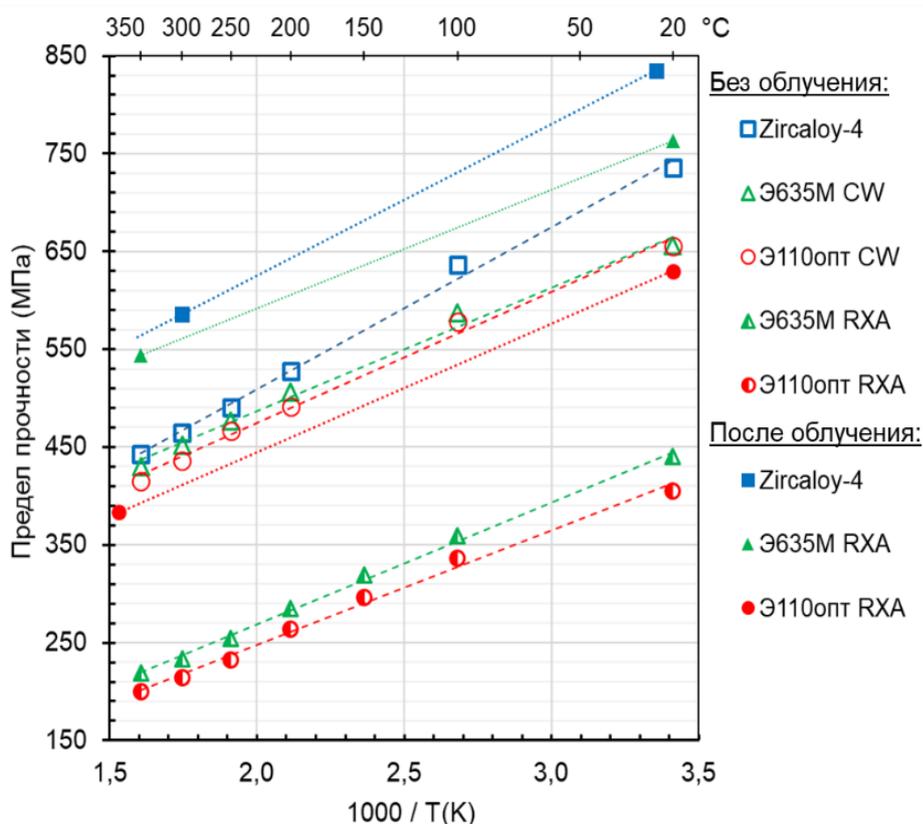


Рисунок 2.1 - Температурные зависимости предела прочности исследуемых труб

Поэтому для экспериментов на ЗГР трубы после завершающей прокатки в размер подвергали термообработке при 400 °С - 24 часа для снятия напряжений, оставляя их фактически в состоянии деформационного упрочнения (CW). При этом, предел прочности

труб, по сравнению с состоянием RXA, возрос в 1,5-2 раза (рисунок 2.1) в зависимости от типа сплава и температуры испытаний, а структурное состояние и текстура труб стали сопоставимы с аналогичными характеристиками для трубы из сплава Zircaloy-4 в состоянии CWSR (таблица 2.1). Как будет показано ниже, использование деформационного упрочнения для труб из сплавов Э635М и Э110опт позволяет инициировать растрескивание по механизму ЗГР для определения численных значений его основных параметров и сравнения с соответствующими данными, полученными на образцах труб из сплава Zircaloy-4.

Как показали трансмиссионные электронно-микроскопические (ТЭМ) исследования (рисунок 2.2), в состояниях CW и CWSR все три сплава имеют однофазную  $\alpha$ -Zr матрицу с вытянутыми, деформированными зёрнами и равномерно расположенными по объёму и границам зёрен выделениями второй фазы. В сплаве Э110опт выделениями являются частицы  $\beta$ -Nb, а в сплавах Э635М и Zircaloy-4 – частицы фазы Лавеса (интерметаллиды)  $Zr(Nb,Fe)_2$  и  $Zr(Fe,Cr)_2$ , соответственно. На отдельных участках структуры наблюдаются центры зарождения рекристаллизованных зёрен (выделены пунктиром на рисунке 2.2).

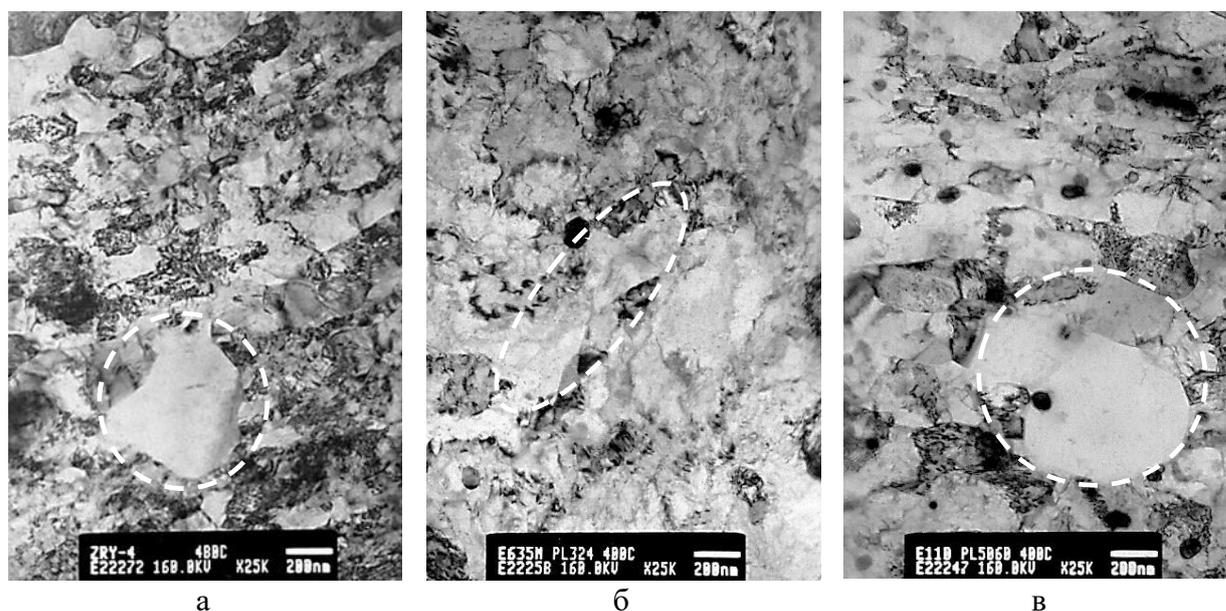


Рисунок.2.2 - Микроструктура испытанных на ЗГР образцов оболочечных труб из сплавов Zircaloy-4 (а), Э635М (б) и Э110опт (в), полученная с помощью ТЭМ (центры зарождения рекристаллизованных зёрен выделены пунктиром)

Как видно по результатам определения текстурных параметров Кернса (таблица 2.1), исследуемые оболочечные трубы из трёх сплавов имеют близкую текстуру ярко выраженного радиального типа, для которой соотношение  $(f_R/f_T) \geq 1,5$ .

## 2.2 Определение предела прочности, микроструктуры и текстуры труб

Кратковременный предел прочности ( $\sigma_b$ ) исследуемых материалов определялся на кольцевых образцах по аттестованной методике ОИ 001.325-2006 «Методика выполнения испытаний для определения характеристик механических свойств, при растяжении образцов труб в поперечном направлении из сплавов циркония» (свидетельство о метрологической аттестации № 3043-2015). Испытания проводились с использованием универсальной серво-электронной испытательной системы INSTRON типа 8800 модель 8861 с относительной погрешностью измерения усилия 0,5 % (свидетельство о поверке №С-МА/28-09-2023/282220430). При температурных испытаниях использовалась климатическая камера INSTRON серии 3119 модель 408, обеспечивающая равномерный нагрев рабочей зоны до заданной температуры и поддержание этой температуры на протяжении всего цикла испытания с предельным отклонением  $\pm 2$  °С. Требования к форме и размерам образцов указаны на рисунке 2.3 и в таблице 2.2. Диаметр опор для кольцевого образца был равен 6 мм, скорость рабочего хода активной траверсы для испытаний составляла 1 мм/мин. Для получения более надежных результатов, на каждую точку испытывалось по 4 образца.

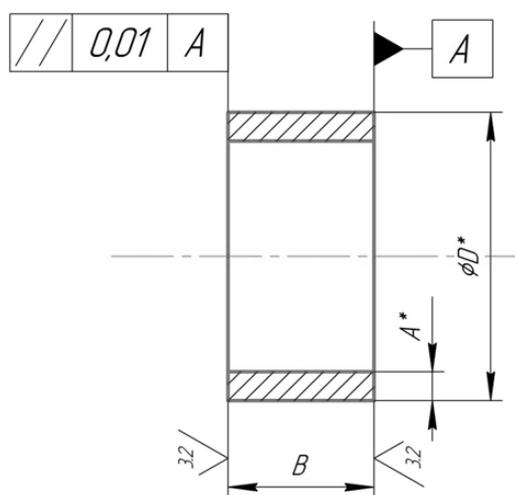


Рисунок 2.3 – Кольцевой образец для испытания на поперечное растяжение

Таблица 2.2 – Размеры кольцевых образцов для испытания на поперечное растяжение

Наружный диаметр трубы (D), мм	9,50
Толщина стенки трубы (A), мм	0,585
Ширина образца (B), мм	2,7 <sup>+0,1</sup>

Использование именно предела прочности в качестве прочностной характеристики для оболочек твэлов, обусловлено тем, что получить в испытаниях кольцевых образцов физический предел текучести невозможно из-за изгиба участков образца в местах, где заканчивается его контакт с опорами оснастки. При этом степень изгиба существенно зависит от прочности материала.

На рисунке 2.1, вместе с данными для необлучённого состояния, приведены значения предела прочности облучённых оболочек из сплавов Э635М и Э110опт в состоянии RXA, полученные при выполнении послереакторных исследований, а также данные для сплава Zircaloy-4 по результатам работы [156]. Такая информация необходима для решения задачи настоящего исследования по прогнозу вероятности возникновения ЗГР в циркониевых оболочках твэлов при эксплуатации и сухом хранении отработавших ТВС (глава 6).

Структурно-фазовое состояние материала труб оболочек твэлов контролировалось методом трансмиссионной электронной микроскопии с применением рентгеновского энергодисперсионного микроанализа (РМА). Использовался электронный микроскоп JEM 2000FXII (JEOL) с ускоряющим напряжением до 200 кВ и микроанализатором EDAX Genesis XMS 60.

Тонкие фольги для ТЭМ изготавливались путем предварительного травления патрубков в реактиве состава: 40% $\text{H}_2\text{O}$  + 40% $\text{HNO}_3$  + 15% $\text{H}_2\text{SO}_4$  + 5% $\text{HF}$  до толщины  $\sim 20 \div 40$  мкм, и последующей струйной электролитической полировки в установке TenuPol-5, с использованием электролита состава: 85%  $\text{CH}_3\text{COOH}$  и 15%  $\text{HClO}_4$ .

Текстуру труб анализировалась рентгеновским методом согласно методике МВИ 345.000.021-2021 «Циркониевые изделия. Методика анализа текстуры и определения параметров текстуры в автоматическом режиме» (свидетельство о метрологической аттестации №01.00044/4396-2021). Исследования проводились на дифрактометре D8 (Advance) производства фирмы Bruker с использованием специализированной текстурной приставки (подвеска Эйлера). Образцы размером  $17 \times 17$  мм готовились таким образом, чтобы направление R трубы совпадало с нормалью к поверхности образца в любой его точке с допустимым отклонением не более  $15^\circ$  (рисунок 2.4). Чтобы обеспечить выполнение данных условий, из каждого образца вырезали сегменты одинаковой ширины. Сегменты наклеивались на пластинки из оргстекла толщиной 1,5 мм. После высыхания клея проводилась шлифовка образцов до получения плоской зеркальной поверхности и травление для снятия наклепанного слоя (30-50 мкм). Травление происходило в водном растворе серной, плавиковой и азотной кислот.

Съемка подготовленных образцов проводилась методом наклона образца для соответствующих отражений (hkl), после чего были построены прямые полюсные фигуры

(ППФ  $\{hkl\}$ ). В качестве численных характеристик текстуры использовались интегральные  $f$ -параметры Кернса, которые определяют анизотропию механических свойств (эти параметры факультативно контролируют в производстве оболочек твэлов).

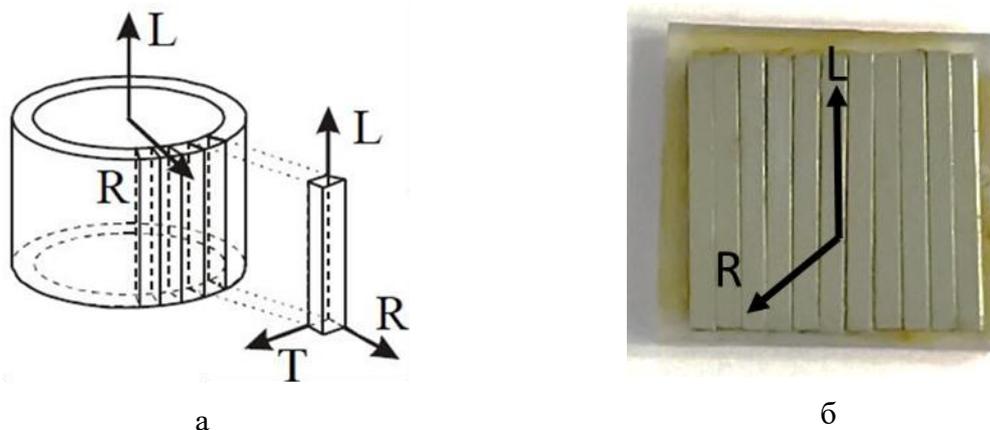


Рисунок 2.4 - Схема вырезки сегментов из трубы для анализа текстуры (а) и установленный в держателе  $R$ -образец, собранный из сегментов (б)

### 2.3 Методика наводороживания, контроля гидридов и содержания водорода

Наводороживание образцов проводилось двумя методами. Для оболочечных труб применялся метод газофазного насыщения, а для труб давления метод электролитического наводороживания.

#### *Методика газофазного наводороживания*

Насыщение водородом коротких (45 мм) отрезков труб проводилось на установке газофазного насыщения (рисунок 2.5) при температуре 390 °С до концентрации порядка 120-150 ppm, превышающей предел растворимости водорода в цирконии во всём температурном диапазоне испытаний на ЗГР. Установка состоит из двух трубчатых печей с рабочим диапазоном температур 20 - 600 °С и 20 – 1100 °С, используемых для нагрева источника водорода и реакционной кварцевой ампулы, соответственно; форвакуумного насоса, обеспечивающего остаточное давления газа (атмосферы) в системе не выше  $2 \cdot 10^{-3}$  атм; транспортной системы из газонепроницаемого молибденового стекла, соединяющей узлы установки; термопарного вакуумметра; датчиков давления PfeifferVacuum CCR363 (рабочий диапазон по давлению  $1,33 \cdot 10^{-3}$  Па – 1333 Па) и PfeifferVacuum CCR261 (рабочий диапазон по давлению  $1,33 \cdot 10^1$  Па – 133322 Па), а так же контроллера, позволяющего осуществлять в режиме реального времени сбор в цифровом виде и контроль параметров

наводороживания (объема системы, показаний вакуумметра, температуры, давления газа и массовой доли водорода в системе).



Рисунок 2.5 – Внешний вид установки газозатравки

Перед процедурой наводороживания каждый образец был зачищен абразивной шкуркой зернистостью 500 мкм для удаления исходной пассивирующей оксидной пленки, промыт в этиловом спирте и взвешен на аналитических весах Shimadzu AUW320 с точностью до  $\pm 0,0001$  г. Далее выполнялась загрузка образца в реакционную ампулу, после чего при помощи вакуумного насоса производилась откачка атмосферы из системы до достижения остаточного давления не выше  $2 \cdot 10^{-3}$  атм. Затем путем нагрева гидроксида циркония в печи сопротивления в систему был проведен напуск заранее рассчитанного количества водорода, которое вычислялось по давлению водорода в системе, массе образца и задействованному объему системы:

$$\%H = \frac{P \cdot V \cdot \mu \cdot 1000000}{m_{\text{обр}} \cdot R \cdot T}, \quad (2.1)$$

где % H – доля водорода в системе, по отношению к массе образца, ppm;

$m_{\text{обр}}$  – масса образца, г;

V – общий объем вакуумной системы, м<sup>3</sup>;

P – разность между исходным после вакуумирования и текущим давлением в системе, Па;

T – температура в системе, К;

R – универсальная газовая постоянная, Дж/(моль·К);

$\mu$  – молярная масса газообразного водорода, г/моль.

Исходная масса образца является условно постоянной величиной, которая была определена при взвешивании. Объем вакуумной системы также фиксированный и составляет  $0,001074 \text{ м}^3$  при отключенной от системы резервной емкости и  $0,004994 \text{ м}^3$  при задействовании резервной емкости. Молярная масса газообразного водорода -  $2 \text{ г/моль}$ . Универсальная газовая постоянная -  $8,3144598 \text{ Дж/(моль}\cdot\text{К)}$ . Переменными в процессе эксперимента являются два параметра – давление газообразного водорода и температура в реакционной ампуле с образцом.

После напуска необходимого количества водорода в систему испытываемый образец нагревался до температуры наводороживания. В зависимости от заданного давления при достижении температуры  $\sim 370 - 380 \text{ }^\circ\text{C}$  начиналось поглощение водорода образцом, сопровождающееся падением давления газа в системе. Количество водорода, поглощенного образцом, определялось как разность исходного (выделившегося из гидрида циркония) и оставшегося газа в системе в каждый момент времени. Типичная диаграмма наводороживания представлена на рисунке 2.6.

По завершению каждого эксперимента для подтверждения заданной концентрации водорода производилось взвешивание гидрированных образцов на аналитических весах Shimadzu AUW320 с точностью  $\pm 0,0001 \text{ г}$ .

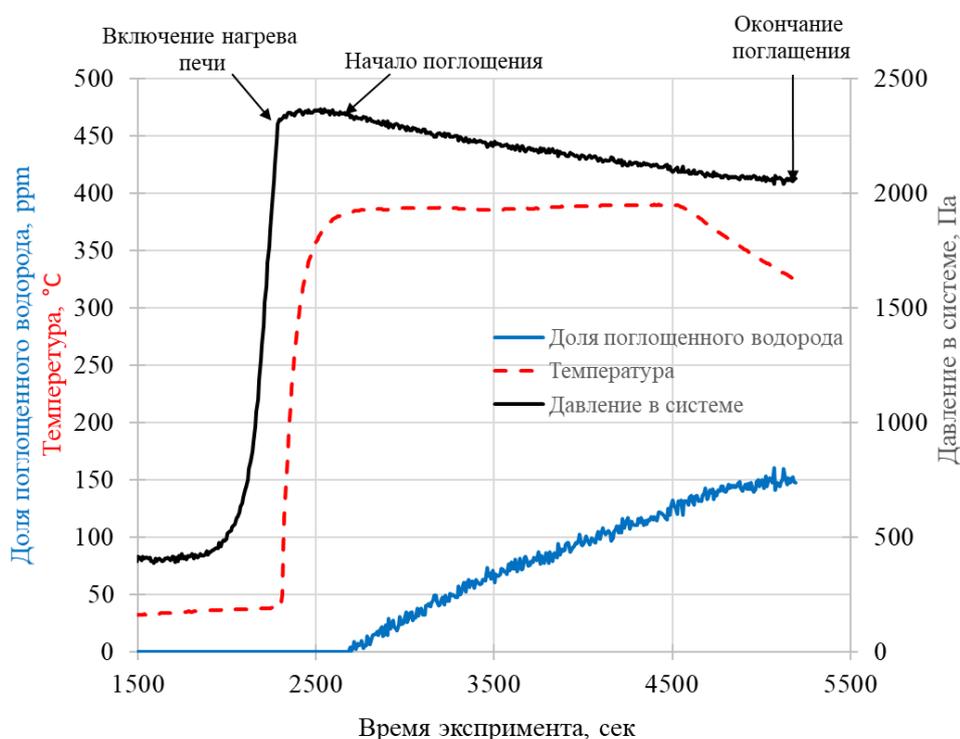
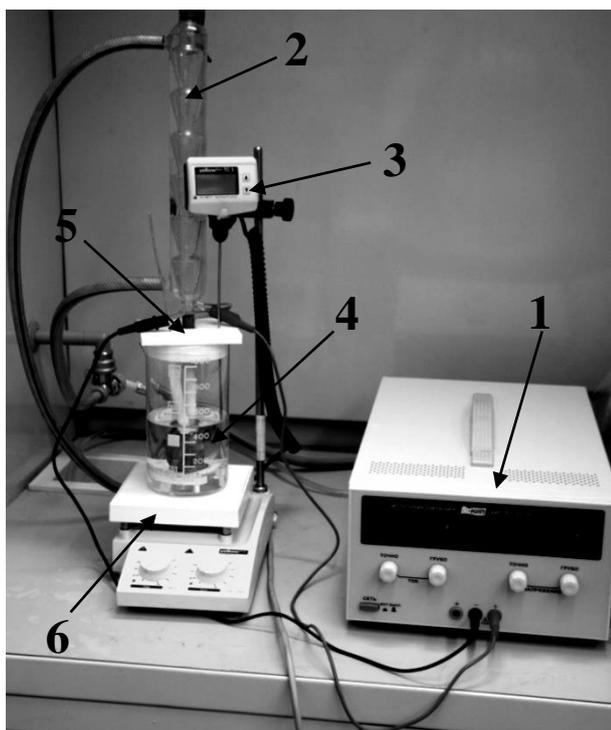


Рисунок 2.6 – Типичная диаграмма газозаводороживания образца до расчетного содержания водорода 150 ppm

### *Методика электролитического наводороживания*

Общий вид установки электролитического наводороживания, использовавшейся для насыщения образцов от труб давления, представлен на рисунке 2.7. Установка состоит из емкости для электролиза с тefлоновой крышкой и охлаждающим сосудом, магнитной мешалки с возможностью контроля температуры электролита и источника постоянного тока.

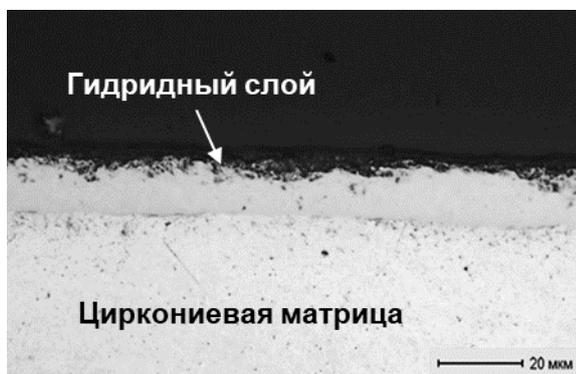


- 1– Источник питания
- 2– Охлаждающий сосуд
- 3– Управляющая терморпара
- 4– Ёмкость для электролиза
- 5– Тefлоновая крышка
- 6– Магнитная мешалка с подогревом

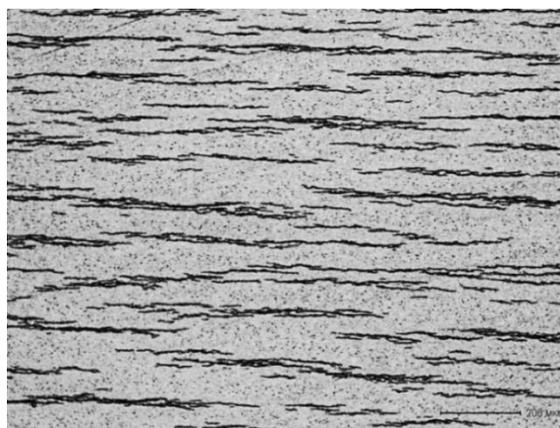
Рисунок 2.7 – Внешний вид модернизированной установки электролитического наводороживания

В качестве электролита использовался раствор калиевой щелочи, в качестве анода – платиновая сетка. Плотность тока для электролиза варьировалась в интервале  $0,1-2,0 \text{ A/cm}^2$ , время электролиза составляло 24 часа. По окончании процесса электролиза образцы подвергались гомогенизирующему отжигу в горизонтальной трубчатой печи ПТ200. Отжиг необходим для диффузии водорода из слоя гидроида в тело образца и его равномерного распределения по объему. Температура отжига выбиралась исходя из заданной

концентрации водорода в диапазоне 350-390 °С. На рисунке 2.8 показан типичный вид гидридного слоя, сформированного при электролитической диссоциации раствора калиевой щелочи на образцах сечением 4×4 мм и распределение гидридов в образце после гомогенизирующего отжига.



а



б

Рисунок 2.8 – Типичный внешний вид гидридного слоя, сформированного после электролитического наводороживания (а), и распределения гидридов в образце после гомогенизирующего отжига (б)

#### *Контроль распределения гидридов*

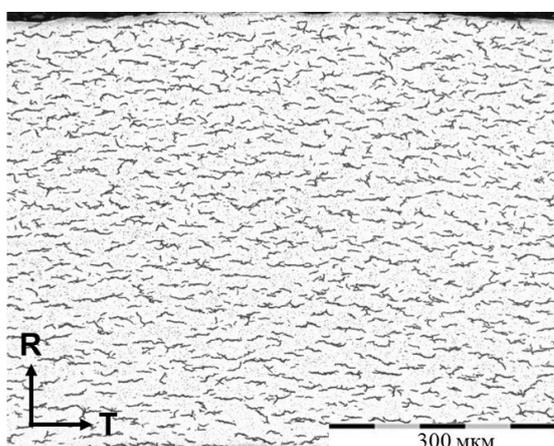
Контроль распределения гидридов после наводороживания осуществлялся металлографическим способом. Образцы для исследований отрезались алмазным отрезным диском толщиной 0,5 мм на станке «Minitom» фирмы «Struers» и запрессовывались методом холодной заливки с применением эпоксидной смолы Specifix-40. Для получения поверхности на образцах с высокой отражающей способностью и без дефектов подготовка проб на станке TegraPol проводилась в следующей последовательности:

- грубое шлифование с последовательным использованием абразивной шкурки зернистостью 220, 500 и 1000;

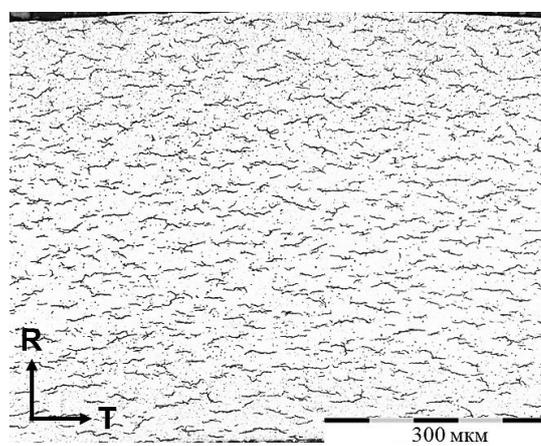
- тонкое шлифование с использованием алмазной суспензии на водной основе;
- полирование с использованием алмазной суспензии на водной основе с размером зерна 3 мкм и 1 мкм;
- финишное полирование с использованием коллоидной кремниевой суспензии.

После приготовления шлифа, его поверхность подвергалась травлению реактивом  $\text{AgNO}_3 + \text{HNO}_3 + \text{HF}$  в течение 5 секунд.

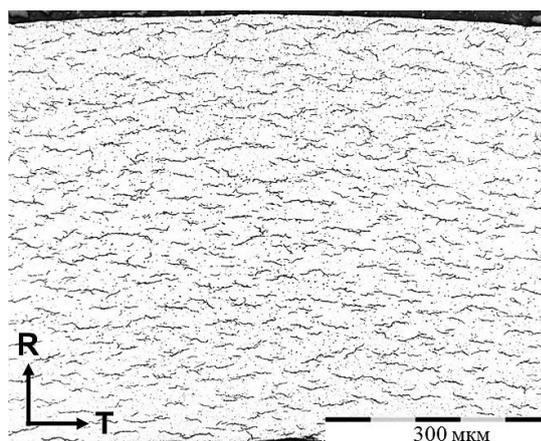
Визуальный осмотр и фотографирование металлографического шлифа осуществлялось с использованием оптического микроскопа Olympus GX51 с анализатором фрагментов микроструктуры твердых тел SIAMS. Типичное распределение гидридов в образцах оболочек после газофазного наводороживания до уровня 120-150 ppm приведено на рис.2.9.



а) Zircaloy-4



б) Э635М



в) Э110опт

Рисунок 2.9 – Типичное распределение гидридов на поперечном шлифе образцов исследуемых сплавов после процедуры газофазного наводороживания до уровня 120-150 ppm

### *Определение содержания водорода*

Содержание массовых долей водорода в образцах определялось методом инфракрасной абсорбции на приборе LECO серии TCH-600. Определение содержания водорода проводилось в соответствии с аттестованной методикой МВИ № 58/307-2012 «Методика выполнения измерений массовых долей водорода методом восстановительного плавления на анализаторе TCH-600 фирмы LECO» (свидетельство о метрологической аттестации № 001.00044/3920-2019). В качестве навески для проведения измерений концентрации водорода в трубчатых образцах использовались сегменты высотой 2 мм и массой 100-120 мг, вырезанные от нижнего и верхнего торца наводороженных патрубков. В качестве навески для проведения измерений концентрации водорода в образцах прямоугольного сечения использовались кусочки размерами  $\sim (2 \times 2)$  мм. От каждого наводороженного образца было отобрано не менее трех проб.

### **2.4 Образец, способ нагружения и схема испытания на ЗГР**

Испытания на ЗГР с определением его основных параметров ( $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$ ) проводили с использованием способа нагружения тонкостенного трубчатого образца Pin-Loading Tension (PLT), разработанного специалистами Студсвика (Швеция) изначально для определения характеристик вязкости разрушения [150], и затем предложенного для испытаний на ЗГР [157]. В PLT заложен принцип испытания на внецентренное растяжение для определения параметров ЗГР в осевом (L) направлении радиально-осевой (R-L) плоскости оболочечной трубы (рисунок 2.10). Суть метода PLT заключается в развитии с одного конца 13 мм длины образца двух диаметрально расположенных трещин ЗГР из концентраторов напряжений в виде осевых надрезов, заостренных усталостными трещинами (рисунок 2.10а).

Усталостные трещины, составлявшие с надрезами исходные трещины (концентраторы напряжений) длиной 3 мм, выращивались на машине для динамических испытаний «Instron ElectroPuls E3000» методом пошагового снижения максимальной нагрузки цикла с использованием оснастки для PLT образца (рисунок 2.10б). Максимальные нагрузки составляли от 200 до 100 Н с шагом 20-50 Н, минимальная нагрузка 20 Н. Количество циклов при наведении трещины варьировалось от 15000 до 70000. Управление и контроль за параметрами системы (максимальная и минимальная нагрузка, амплитуда цикла, количество циклов) осуществлялось в среде программы WaveMatrix 1.6. Рост усталостной трещины в процессе её наведения контролировался по увеличению амплитуды раскрытия захватов (рисунок 2.11).

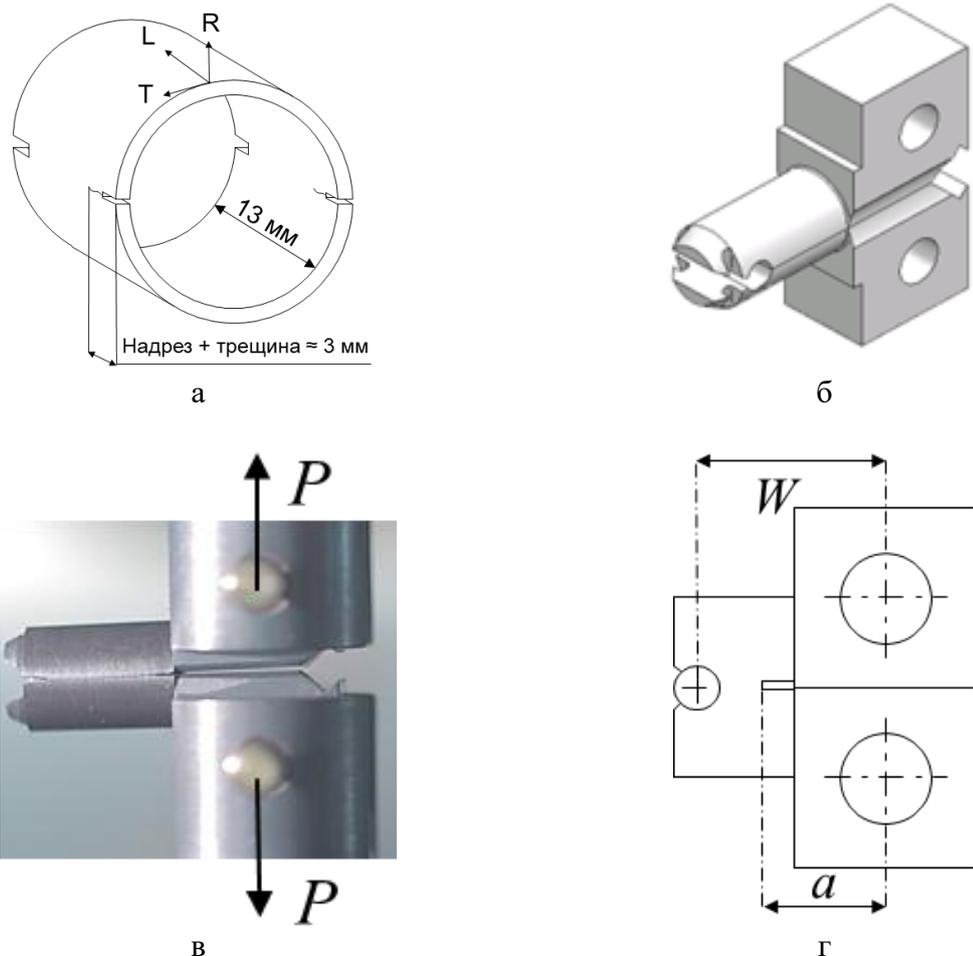


Рисунок 2.10 - Эскиз образца (а), изображение оснастки (б), изображение образца на оснастке в захватах испытательной системы (в) и схема оснастки в сборе с образцом (г)

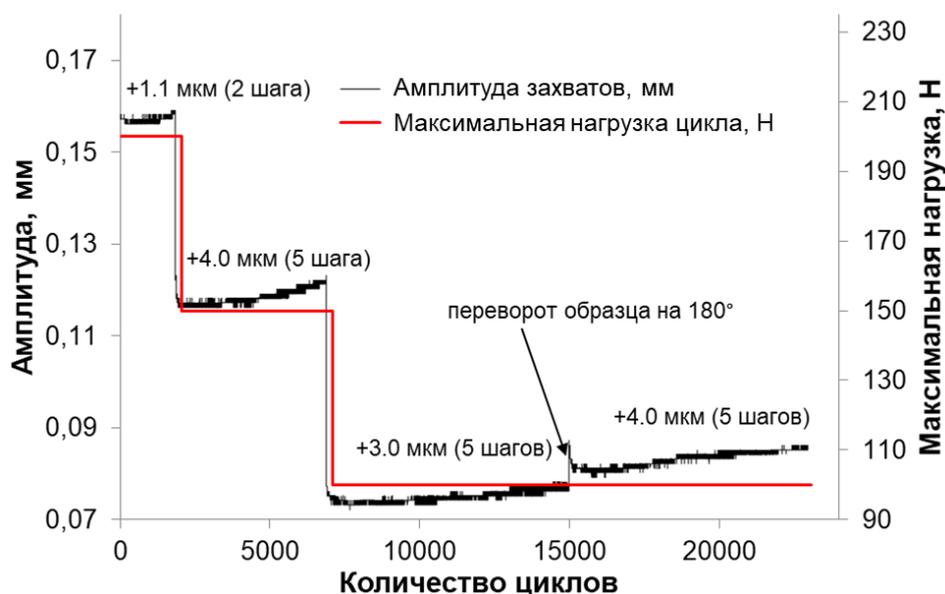


Рисунок 2.11 – Типичная диаграмма изменения амплитуды раскрытия захватов в зависимости от максимальной нагрузки цикла в процессе наведения усталостной трещины

Контрольное измерение длин трещин с обеих сторон образца проводилось каждый раз при снижении максимальной нагрузки, а также при повороте образца, который выполнялся для обеспечения равномерного выращивания трещины с противоположных сторон по диаметру. Измерение длины трещины (рисунок 2.12) проводилось при помощи лазерного конфокального микроскопа «Lext OLS 4000».

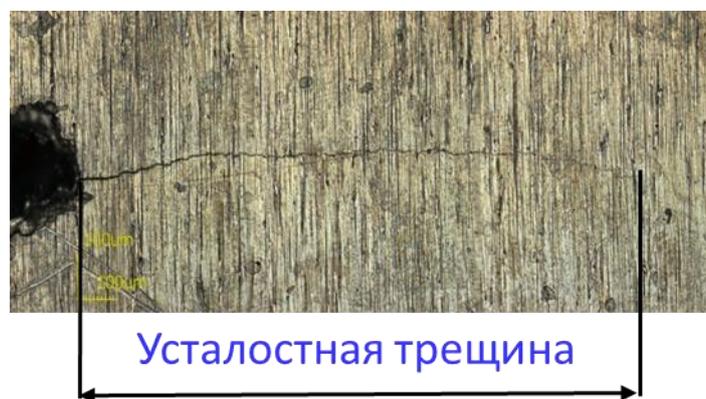


Рисунок 2.12 – Внешний вид боковой поверхности образца с наведенной усталостной трещиной

Для проведения испытаний на ЗГР оснастка с образцом устанавливалась в захваты, находившиеся в климатической камере испытательной системы INSTRON 8861 (рисунок 2.10в). Управление параметрами системы (температура, нагрузка, перемещение подвижной траверсы с захватом) осуществлялось в среде программы WaveMatrix 1.6.

Нагрев, охлаждение и нагружение образцов в экспериментах на ЗГР (рисунок 2.13) выполнялась в соответствии с согласованной участниками проекта МАГАТЭ процедурой. Образец без нагрузки нагревался со скоростью 5 °С/мин до температуры 385°С, выдерживался 60 минут, чтобы большая часть гидридов растворилась, и затем охлаждался со скоростью 1,5 °С/мин до температуры испытания. После выдержки не менее 60 минут для выравнивания и стабилизации температуры производилось нагружение. Испытания проводились при температурах в диапазоне от 150 °С до 305 °С.

На рисунке 2.14 приведено зафиксированное закалкой в воду с температуры 227 °С распределение гидридов в продольно-радиальной (L-R) плоскости образцов, сформировавшееся перед нагружением в результате нагрева и охлаждения по вышеописанной схеме. Видно, что исходное распределение гидридов в плоскости распространения трещины в образцах сплавов однотипное, что отражает сопоставимость их состояний для испытаний на ЗГР.

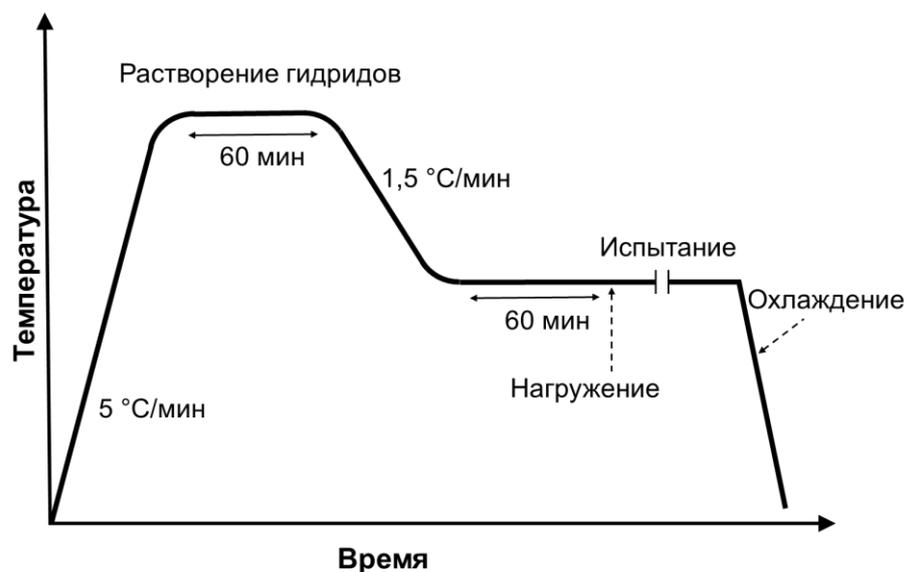


Рисунок 2.13 - Схема нагрева, охлаждения и нагружения образца в экспериментах на ЗГР

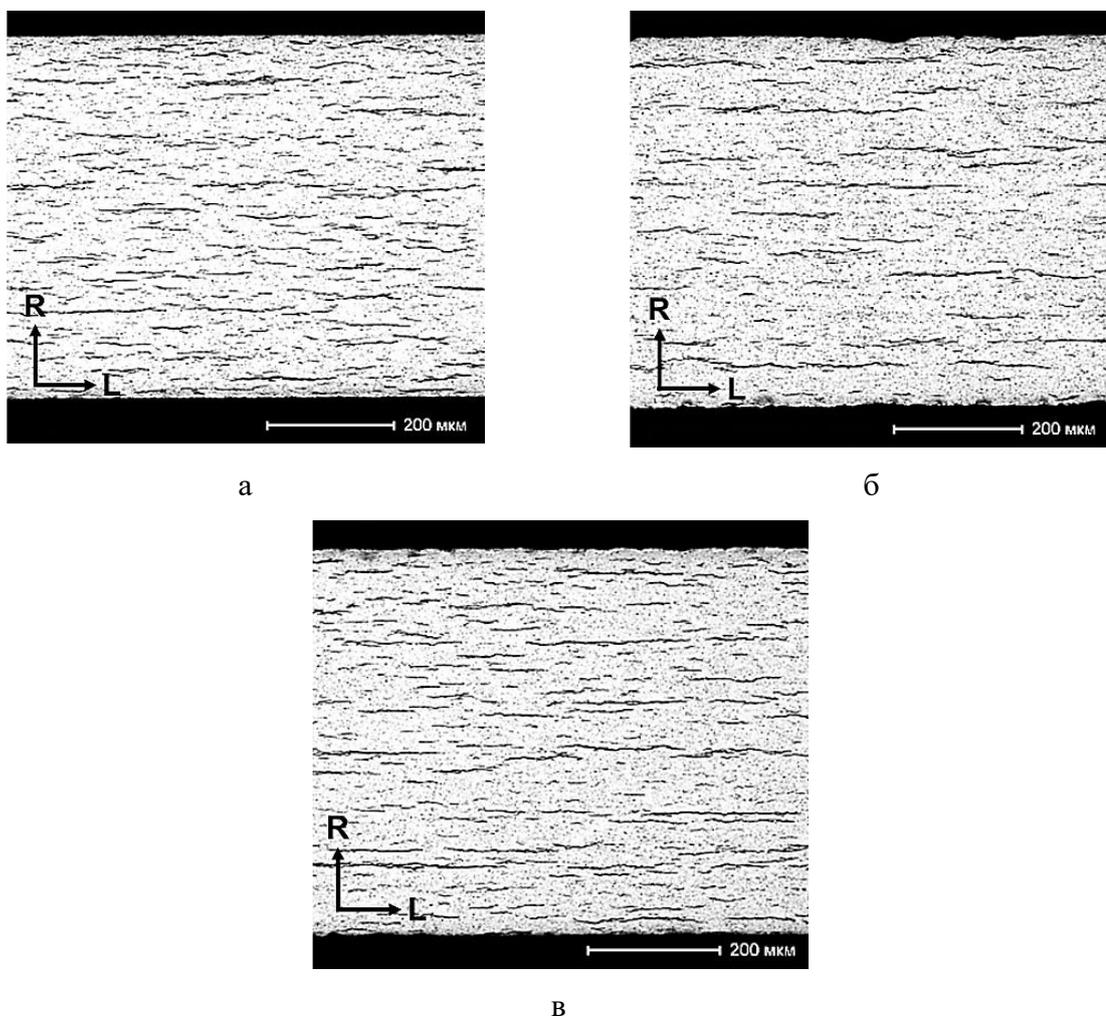


Рисунок 2.14 - Распределение гидридов в продольно-радиальной (L-R) плоскости образцов из сплавов Zircaloy-4 (а), Э635М (б) и Э110опт (в) с содержанием водорода на уровне 120-150 ppm перед их нагружением в испытании на ЗГР при температуре 227 °С

По завершении испытания и охлаждения до комнатной температуры образец разламывался. Точные размеры длины надрезов, усталостных трещин и трещин ЗГР измерялись по изломам методом девяти секущих, согласно ASTM E1820-15a, на микроскопе «Lext OLS 4000» с использованием его программного обеспечения. Для каждого образца вычислялась средняя длина трещины по двум диаметрально расположенным трещинам с учётом критерия приемлемой разности между ними (менее 20 %) [143].

Значение  $K_I$  в вершине трещины рассчитывали по формуле [17,143,157]:

$$K_I = [P/(2t\sqrt{W})]f(a/W) \text{ (МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}) \quad (2.1)$$

где:  $P$  - нагрузка (Н);

$t$  - толщина стенки трубы (м);

$W$  - эффективная ширина образца (м) - расстояние от линии нагружения до оси вращения (рисунок 2.10г);

$a$  - эффективная длина трещины (м) - расстояние от линии нагрузки до вершины трещины (рисунок 2.10г);

$$f(a/W) = 92,203 - 468,73(a/W) + 787,15(a/W)^2 - 360,99(a/W)^3 -$$

корректирующий фактор геометрии для PWR оболочек.

Скорость ЗГР во всех экспериментах вычислялась путём деления длины трещины ЗГР на время её роста.

## 2.5 Фрактография

Изломы трещин ЗГР после разлома образца первоначально были визуально осмотрены в стереомикроскопе Stemi 2000-C при различном увеличении от 6,5 до 50 крат. Для этого излом образца закреплялся на предметном столике и проводился его осмотр с вращением относительно оси объектива и изменением угла падающего света с целью наиболее качественного выявления изображения бороздок.

После этого изучение и фотографирование изломов было продолжено на лазерном конфокальном микроскопе «Lext OLS 4000». Использование конфокальной оптической системы позволило проводить послойное (с шагом 1 мкм) сканирование излома и получать его изображение только в плоскости фокусировки. Для точного отображения излома съёмка проводилась при увеличении 400 крат. Размер сканируемого кадра при таком увеличении составляет площадку 0,643x0,643 мм, охватывающую целиком толщину стенки оболочки. Получение панорамной картины излома в целом (рисунок 2.15) достигалось путем

автоматической сшивки последовательных снимков его отдельных участков в программном обеспечении микроскопа.

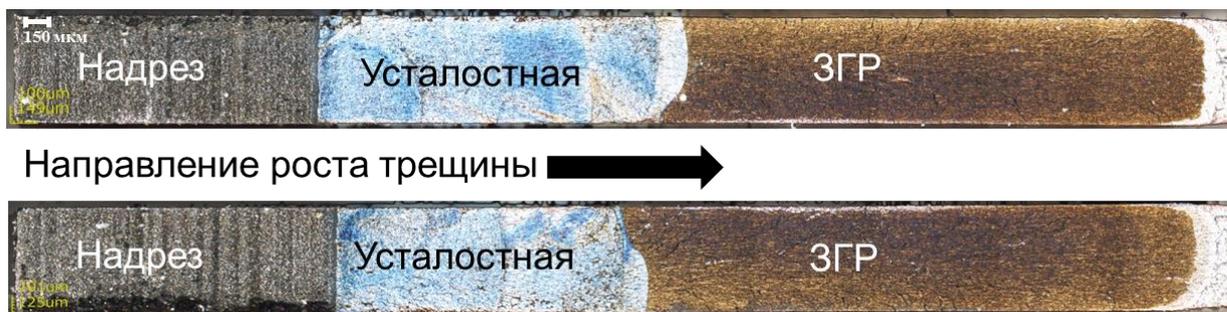
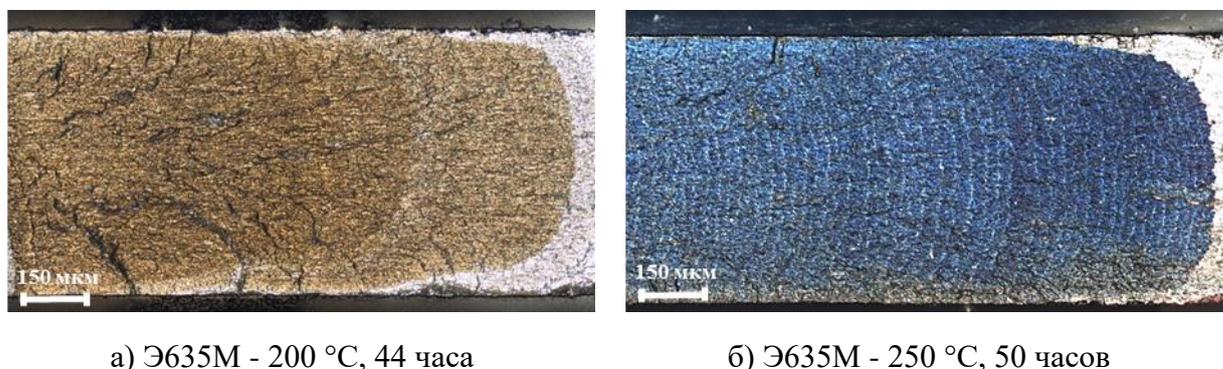


Рисунок 2.15 – Панорамное изображение изломов с двух диаметрально противоположных сторон образца из сплава Zircaloy-4 после испытания на ЗГР при 250 °С

Качество изображения бороздок зависело от степени окисления поверхности трещины, зависящей от температуры и времени испытания на ЗГР. На одном и том же материале бороздчатый рельеф может проявляться по-разному в зависимости от температурных условий испытания (рисунок 2.16).



а) Э635М - 200 °С, 44 часа

б) Э635М - 250 °С, 50 часов

Рисунок 2.16 – Участки трещин ЗГР в образцах из сплава Э635М после испытаний при различных температурах

На панорамных снимках изломов с двух диаметрально расположенных сторон образца (рисунок 2.15) производилось измерение размеров трещин, необходимое для вычислений параметров ЗГР. Определяли исходную трещину ( $a_0$ ), включавшую надрез и усталостную трещину, и конечную длину трещины ( $a_f$ ), составлявшую в сумме надрез, усталостную трещину и трещину ЗГР. По размеру  $a_0$  вычислялось точное значение

исходной величины  $K_I$ . По размеру  $a_f$  вычислялось искомое значение  $K_{II}$ . Размер трещины ЗГР ( $a_{ЗГР}$ ) для определения скорости роста трещины вычислялся как разность  $a_f - a_0$ .

Расстояние между бороздками (при их выявлении) вычислялось с использованием программного обеспечения микроскопа как отношение длины исследуемого участка в изломе к количеству бороздок на нем.

## 2.6 Выводы по главе 2

1. В качестве материалов исследований использованы выпускаемые промышленными предприятиями трубы для оболочек твэлов номенклатуры PWR из сплавов Zircaloy-4 (производство фирмы Sandvik, Швеция), а также Э635М и Э110опт (производство АО ЧМЗ, г. Глазов, Россия), представляющих три системы легирования циркония. Финишная термическая обработка труб обеспечила им сопоставимые металлургические состояния холодной деформации и снятия напряжений для проведения сравнительных исследований стойкости сплавов разных систем легирования к замедленному гидриднему растрескиванию.

2. Для научной обоснованности, достоверности и согласованности получаемых результатов настоящей работы применены современные методы исследований, в том числе: просвечивающая электронная микроскопия, рентгеноструктурный анализ и испытания на кратковременное растяжение для характеристики исследуемых оболочечных труб; газофазное наводороживание для насыщения их водородом; оптическая металлография и инфракрасная абсорбция соответственно для контроля распределения гидридов и определение массовых долей водорода в наводороженных образцах; оптическая фрактография для изучения изломов после испытаний на ЗГР. Исследования проведены на поверженном оборудовании и с использованием метрологически аттестованных методик.

3. В испытаниях на ЗГР оболочек использован способ нагружения Pin-Loading Tension (PLT), использующий принцип внецентренного растяжения тонкостенного трубчатого образца и позволяющий определять параметры ЗГР в осевом (L) направлении радиально-осевой (R-L) плоскости оболочечной трубы. Нагрев, охлаждение и нагружение образцов в экспериментах на ЗГР осуществлялось по схеме, рекомендованной МАГАТЭ и применяемой в международной практике таких испытаний, что даёт возможность сопоставления полученных результатов с опубликованными данными.

### Глава 3. Разработка нового метода испытаний на ЗГР для оболочек твэлов

#### 3.1 Метод «постоянного перемещения» и его возможности

Как указано в главе 1, до выполнения настоящей работы в практике испытаний на ЗГР для определения значений  $K_{I\text{н}}$  применялись три метода:

- Метод многих образцов, заключающийся в измерении скорости роста трещины на серии образцов, испытываемых при различных значениях  $K_I$ . По результатам испытаний строится зависимость скорости ЗГР от  $K_I$  и определяется значение, при котором скорость ЗГР равна нулю. Этот метод является наиболее простым и может быть реализован без применения специальных инструментов. В качестве примера на рисунке 3.1 приведены результаты испытаний методом многих образцов оболочки твэла реактора CANDU при температуре 250 °С. Результирующее значение  $K_{I\text{н}} \sim 7 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ . Основным недостатком метода является необходимость использования нескольких образцов (порядка 10) для получения одного значения  $K_{I\text{н}}$  при каждой температуре испытаний.

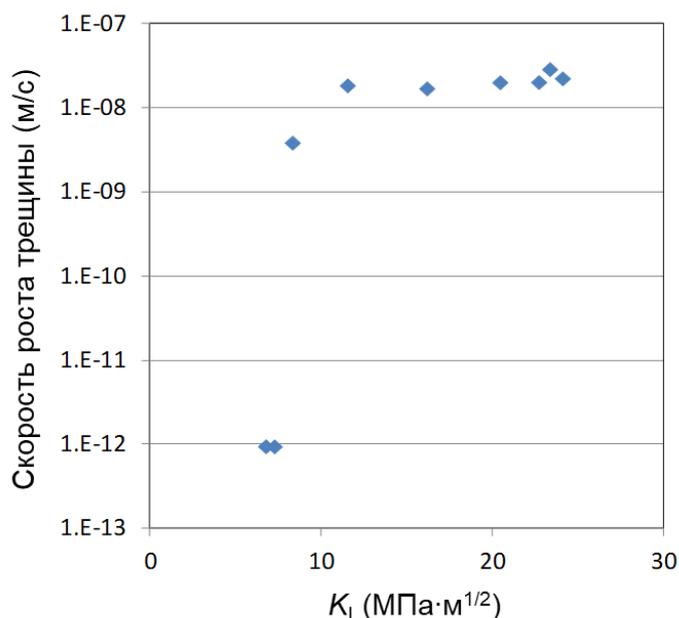


Рисунок 3.1 – Определение значения  $K_{I\text{н}}$  для CANDU оболочки из сплава Zircaloy-4 в испытаниях при 250 °С методом многих образцов [143]

- Метод повышения нагрузки. При использовании этого метода испытание образца начинают при значении  $K_I$  заметно ниже ожидаемой величины  $K_{I\text{н}}$ , и после 24 часов выдержки, если трещина ЗГР не стартовала, увеличивают нагрузку на малую величину (3-5 %). Процедура повторяется до тех пор, пока не начнется растрескивание (рисунок 3.2).

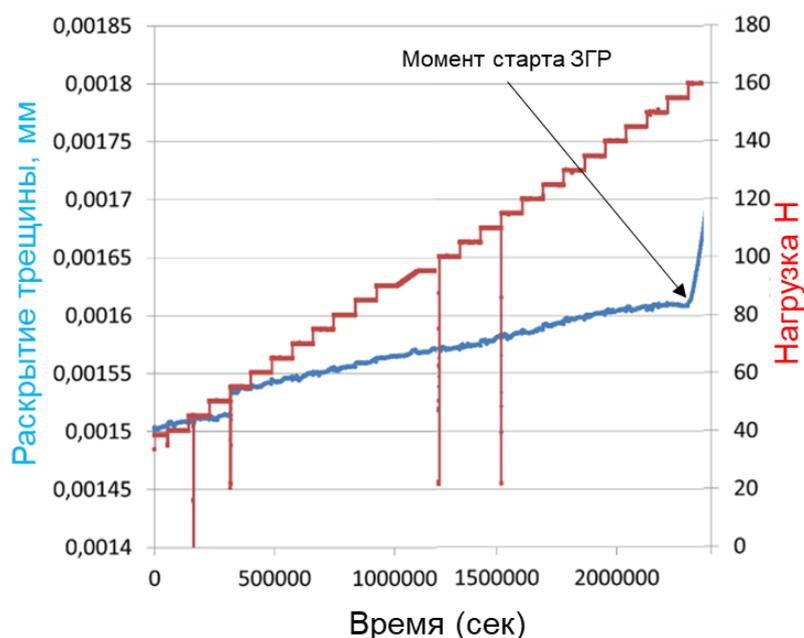


Рисунок 3.2 – Типичная диаграмма испытания образцов по определению  $K_{II}$  методом увеличения нагрузки

В качестве величины  $K_{II}$  принимают значение  $K_I$  при наибольшей нагрузке, при которой растрескивание не происходило. Длина трещины ЗГР в этом методе испытаний, как правило, небольшая, обычно в диапазоне 0,2-0,5 мм. В принципе, испытание данным методом, также можно проводить без приборов, применяя разлом образца при появлении признаков растрескивания. Однако, при низких температурах, когда скорость роста трещины мала, нагрузки, вызывающие растрескивание, могут быть пропущены на некоторых этапах увеличения нагрузки, и результирующее значение  $K_{II}$  будет завышенным. Поэтому, предпочтительно использовать какой-нибудь метод обнаружения растрескивания, который позволит более точно определить  $K_{II}$ .

- Метод снижения нагрузки. При использовании этого метода испытание образца начинают с растрескивания при умеренном значении  $K_I$ , выше ожидаемой величины  $K_{II}$ , и снижают нагрузку малыми шагами, пока трещина не остановится (не будет расти в течение 24-х часов). На рисунке 3.3 приведен пример такого испытания образца РWR оболочки из сплава Zircaloy-4 с записью роста длины трещины по мере снижения нагрузки при температуре 250 °С [143]. В результате получено значение  $K_{II} = 5,2 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$ .

Проведение испытаний этим методом сопровождается увеличением инкубационного периода и уменьшением скорости роста трещины при каждом шаге снижения нагрузки [143]. Метод снижения нагрузки наиболее сложный и требует обеспечения обратной связи с помощью контроллера испытательной системы по мере изменения параметров испытаний, чтобы свести к минимуму участие оператора и избежать необходимости

разгружать образец в ночное время и на выходные дни. Выбор пошаговой величины снижения нагрузки и степени растрескивания между этапами её снижения важны для получения приемлемых результатов испытания. В типичном испытании (рисунок 3.3) нагрузку постепенно снижали от 150 Н за 35-40 шагов по 3-4,5 % после каждого прироста трещины на 0,05 мм. Отсутствие адекватной компьютерной обратной связи и контроля за проведением экспериментов зачастую приводит к неприемлемым результатам испытаний.

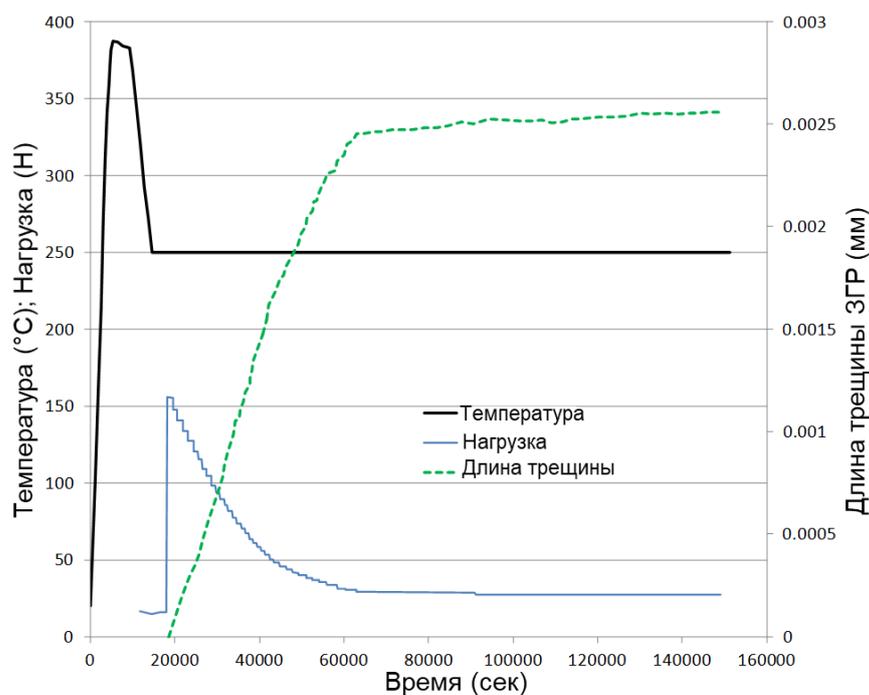


Рисунок 3.3 – История испытания при 250 °C образца PWR оболочки из сплава Zircaloy-4 [143]

Результаты использования указанных методов в рамках проекта МАГАТЭ показали существенный разброс значений  $K_{I\text{н}}$  для образцов оболочек из сплава Zircaloy-4 (рисунок 1.39). Значения  $K_{I\text{н}}$ , определённые при температуре испытаний 250 °C по 37 испытанным PLT-образцам, лежат в диапазоне от 2 до 10 МПа·√м (среднее значение 5,4 МПа·√м и среднеквадратичное отклонение 1,7 МПа·√м) [151].

Опробование автором испытаний с определением  $K_{I\text{н}}$  методами снижения и повышения нагрузки, а также анализ методических особенностей, свойственных трём вышеуказанным методам, побудили автора данного исследования разработать новый, более эффективный метод определения  $K_{I\text{н}}$ , называемый «constant displacement method» [158] или метод «постоянного перемещения» [159]. Апробирование разработанного метода впервые проведено при испытаниях PLT-образцов оболочки из сплава Zircaloy-4 с использованием испытательной системы INSTRON 8861 [160]. Полученные значения величины  $K_{I\text{н}}$  в шести

экспериментах при температуре 250 °С (таблица 3.1) дают такую же среднюю величину этого параметра 5,4 МПа·√м, как и на рисунке 1.39, но при существенно меньшем среднеквадратичном отклонении 0,35 МПа·√м [161], что свидетельствует о лучшей сходимости результатов. Значения для величины  $K_{Ih}$ , определённые данным методом, получили положительную оценку международных экспертов, и метод был рекомендован к применению и распространению среди стран-участниц проекта МАГАТЭ [143].

Таблица 3.1 - Результаты определения  $K_{Ih}$  в испытаниях при температуре 250 °С по методу «постоянного перемещения» на PLT образцах оболочек из сплава Zircaloy-4

Номер образца	$K_I^{СТАРТ}$ , МПа·√м	$K_{Ih}$ , МПа·√м	Среднее значение $K_{Ih}$ , МПа·√м	СКО
1	11,5	5,0	5,4	0,35
2	10,9	5,4		
5	11,2	5,7		
6	10,1	5,8		
7	14,1	5,5		
9	12,4	5,0		

Новый метод заключается в поддержании постоянного раскрытия берегов трещины в образце оболочки за счёт фиксации перемещения подвижного захвата испытательной системы. При фиксированном раскрытии трещины в образце, рост её длины (надрез + усталостная трещина + ЗГР трещина) сопровождается смещением точек приложения нагрузки, вследствие чего происходит снижение нагрузки, регистрируемое программным обеспечением испытательной системы. Принцип нагружения с фиксацией постоянного раскрытия трещины используется в стандарте ASTM E1681-03 для определения порогового коэффициента интенсивности напряжений путём испытания нескольких компактных образцов из металлических материалов в условиях воздействия агрессивной среды. Для циркониевых материалов похожий способ испытаний впервые был продемонстрирован в работе [162] при изучении растрескивания в газообразном водороде образцов типа двойной консольной балки с определением скорости роста трещины при снижении  $K_I$ .

Ключевое различие предложенного автором метода от ASTM E1681-03 (помимо схемы нагружения и типа используемых образцов), заключается в том, что в разработанном методе определяется не начальное значение  $K_I$ , при котором начинается рост трещины, а финальная его величина, при которой трещина перестает расти. Возможности программного обеспечения применяемой автором испытательной системы INSTRON 8861 позволили осуществить постоянство перемещения подвижного захвата для фиксирования раскрытия трещины и контроль снижения нагрузки по мере увеличения длины трещины в

испытаниях на ЗГР PLT-образцов из тонкостенных оболочек. На рисунке 3.4 показана схема испытания по разработанному методу с приведенными ниже пояснениями.

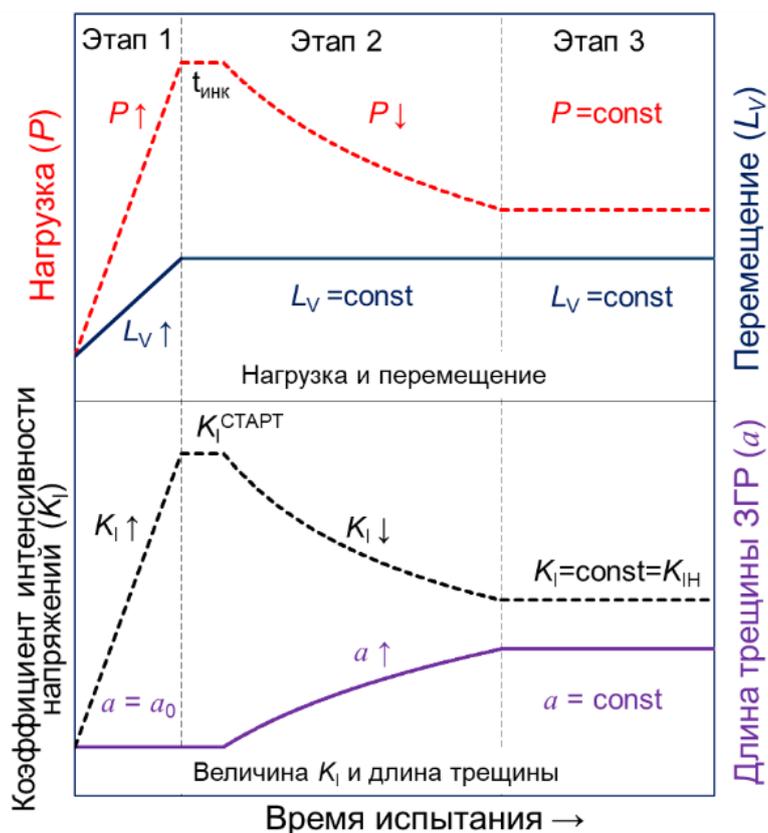


Рисунок 3.4 - Схема диаграммы испытания по определению величины  $K_{IH}$  методом «постоянного перемещения»

В эксперименте задействованы четыре параметра: нагрузка ( $P$ ), перемещение ( $L_V$ ), длина трещины ( $a$ ) и коэффициент интенсивности напряжений ( $K_I$ ). На экране компьютера в режиме реального времени отображаются, регистрируемые системой параметры  $P$  и  $L_V$ .

На первом этапе испытания к образцу прикладывается нагрузка, достаточная для старта роста трещины ЗГР. На этом этапе длина трещины остается неизменной и равной  $a_0$ ,  $K_I$  при этом увеличивается до уровня  $K_I^{\text{СТАРТ}}$ .

На втором этапе программа задаёт (фиксирует) постоянное значение перемещения подвижного захвата испытательной системы ( $L_V = \text{const}$ ), задавая постоянную величину раскрытия трещины в образце. Как правило, по окончании инкубационного периода, в течение которого происходит диффузия водорода в область концентрации напряжений у вершины трещины и образования там критических условий, связанных с размером гидрида, происходит старт трещины ЗГР. По мере продвижения трещины, наблюдается

самопроизвольное снижение нагрузки, приложенной к образцу. При этом  $K_I$  в вершине трещины также плавно понижается.

В определённый момент испытания (третий этап) величина нагрузки для дальнейшего роста длины трещины становится недостаточной, и нагрузка перестает снижаться. На этом этапе все параметры ( $P$ ,  $L_V$ ,  $a$ ,  $K_I$ ) не меняются. По истечении 24-х часов, если параметры не изменились, принимается, что  $K_I$  при конечной нагрузке и длине трещины  $a_f$  соответствует величине  $K_{II}$ .

В процессе проведения испытаний наблюдение за продвижением трещины осуществлялось визуально по наружной поверхности одной из сторон образца через наблюдательное окно климатической камеры с помощью оптической системы. На рисунке 3.5 приведен пример типичной диаграммы снижения нагрузки в процессе испытания для определения  $K_{II}$  по методу «постоянного перемещения» с визуальным контролем роста трещины ЗГР.

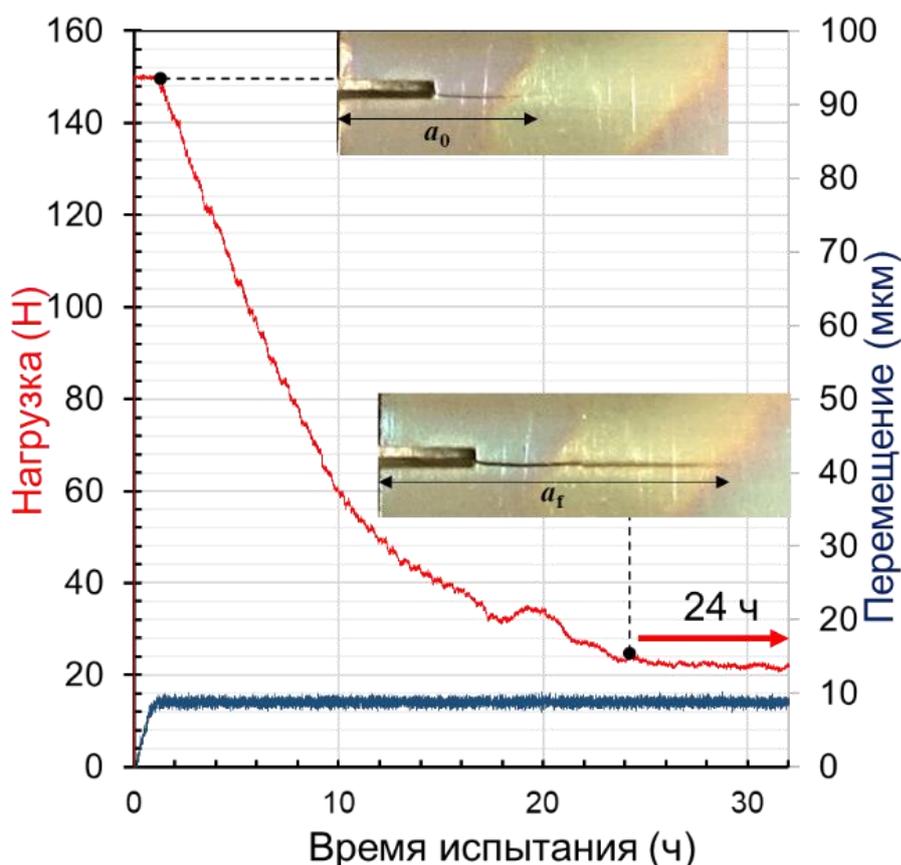


Рисунок 3.5 - Пример диаграммы испытания при температуре 267 °С образца из сплава Э635М: приведены изображения трещины на наружной поверхности в начале и в конце эксперимента

В подтверждение того, что снижение нагрузки на рисунке 3.5 связано только с ростом трещины в результате растрескивания по механизму ЗГР был проведён эксперимент с нагружением образца, в котором условия для реализации ЗГР отсутствовали. Для этого образец из сплава Zircaloy-4 в исходном состоянии без наводороживания, но с усталостной трещиной от надреза, был нагружен силой 200 Н при температуре 300°C. Как видно из приведенного на рисунке 3.6 графика, нагрузка на образце оставалась постоянной в течение более 8 часов. Таким образом, падение нагрузки на рисунке 3.5 происходит только в результате растрескивания по механизму ЗГР, без дополнительного вклада от релаксации напряжений из-за пластической деформации.

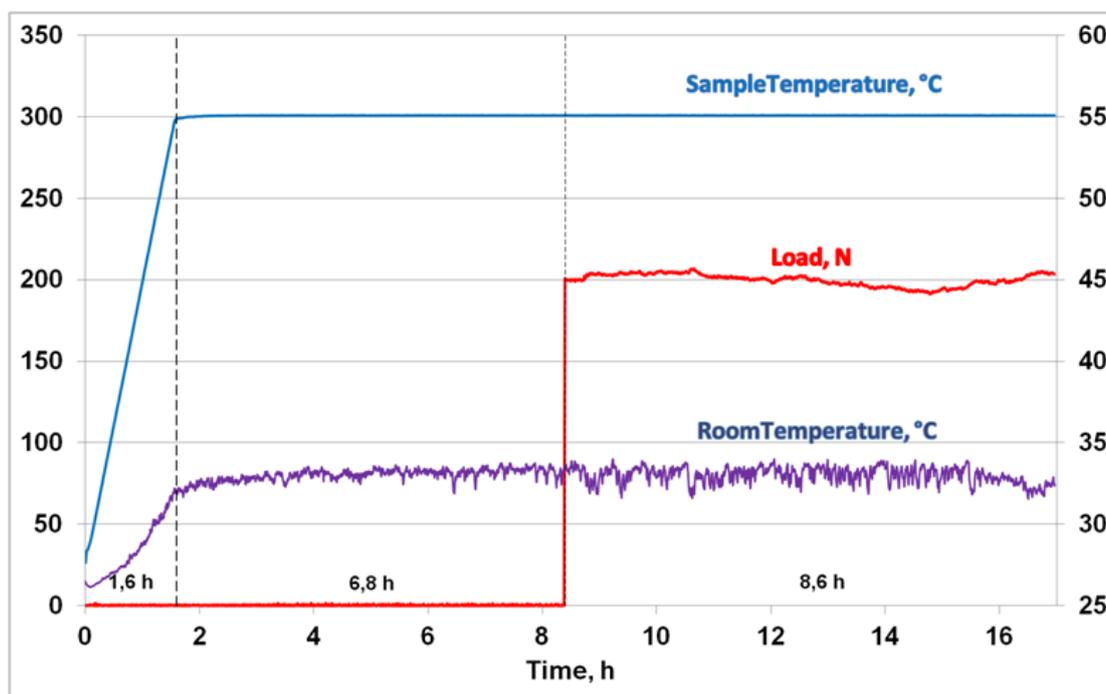


Рисунок 3.6 – Образец оболочки из сплава Zircaloy-4 с надрезом и усталостной трещиной (без дополнительного водорода) под нагрузкой 200 Н при 300 °C [143]

В реальных условиях при проведении испытаний на этапе многочасовой выдержки при постоянной нагрузке, когда рост трещины остановился, показания датчика нагрузки могут не соответствовать строго одному значению, а наблюдается некоторая его флуктуация, что видно по рисункам 3.5 и 3.6. Связан такой эффект с чувствительностью испытательной системы и, как следствие, показаний датчика нагрузки к температуре окружающей среды. Небольшие колебания комнатной температуры вызывают расширение и сжатие массивного натяжного стержня в системе, что влияет на показания приложенной нагрузки. Особенно это заметно при малых значениях нагрузки, которая на этапе 3

испытаний по методу «постоянного перемещения» составляет 25 - 40 Н. На рисунке 3.7 приведен пример одновременной записи показаний датчика нагрузки и температуры воздуха вблизи него в процессе испытаний. Видно, что флуктуации нагрузки и температуры хорошо согласованы.

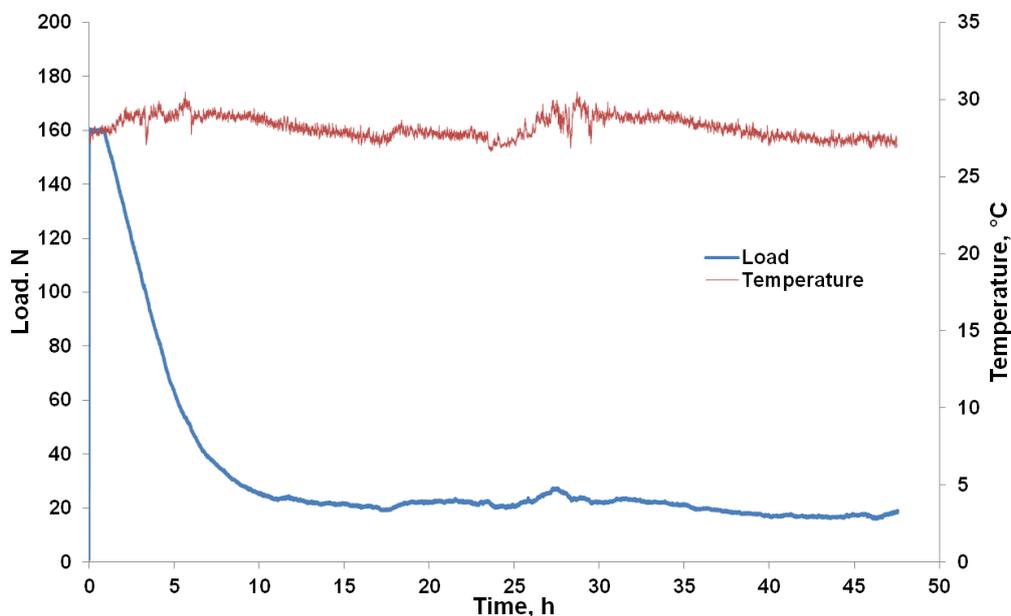


Рисунок 3.7 – Флуктуации показаний датчика нагрузки, соответствующие изменениям температуры окружающей среды, на примере испытания образца из сплава Zircaloy-4 при температуре 282 °С

Разработанный метод имеет следующие преимущества по сравнению с другими, рассмотренными выше методами:

- В разы сокращается время экспериментов по сравнению с методами многих образцов и повышения нагрузки;
- Отсутствуют затраты большого количества образцов, что важно для испытаний облученных материалов в горячих камерах;
- Нет необходимости постоянного контроля оператором параметров испытаний. Снижение нагрузки осуществляется автоматически испытательной системой;
- Помимо  $K_{II}$ , метод позволяет определять и  $V_{ЗГР}$ .

Наглядной иллюстрацией преимуществ разработанного метода является, впервые показанная на практике испытаний на ЗГР циркониевых оболочек твэлов, построение участка диаграммы зависимости скорости ЗГР от  $K_I$  с использованием в эксперименте одного PLT образца (рисунок 3.8). Измерение суммарной длины трещины в каждый

рассматриваемый момент времени испытания (с последующим пересчетом на величину  $K_I$ ) проводилось путем обработки в программе AxioVision фотоизображений боковой поверхности образца, получаемых в процессе испытания. Величина  $K_{II}$  определялась по результатам измерения параметров излома образца. Как видно,  $V_{ЗГР}$  между значениями  $K_I$  от 20,5 до 7,5 МПа·√м имеет практически постоянную величину, и резко снижается вблизи  $K_{II} = 6,74$  МПа·√м. Для сравнения на рисунке 3.1 аналогичный фрагмент диаграммы зависимости скорости ЗГР от  $K_I$  построен по результатам девяти экспериментов по методу многих образцов. Видно, что последний метод существенно (более чем на порядок) увеличивает суммарное время испытаний и затраты материальных ресурсов.

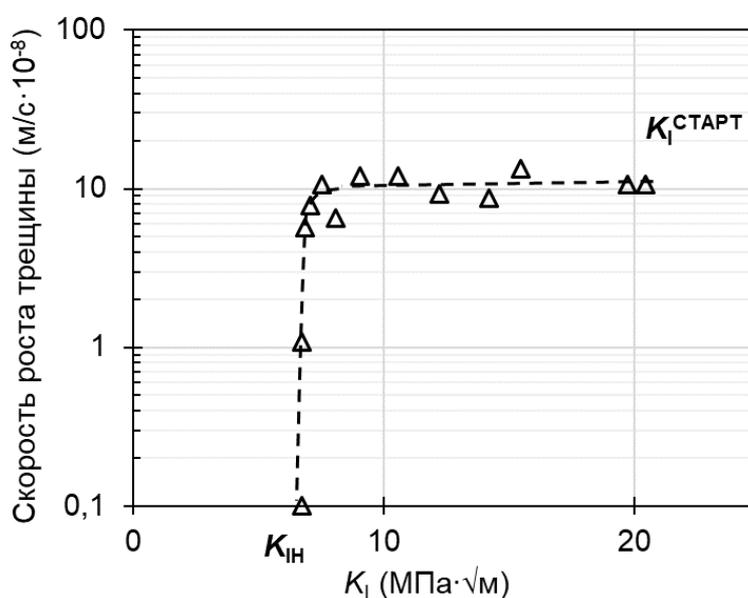


Рисунок 3.8 – Зависимость скорости ЗГР от  $K_I$  по результатам испытаний на  $K_{II}$  методом постоянного перемещении образца Zircaloy-4 при 282 °С.

В рамках настоящей диссертационной работы выполнение испытаний на образцах оболочек из сплавов Zircaloy-4 и Э635М проводили только по разработанной методике «постоянного перемещения» на испытательной системе INSTRON 8861. Для образцов оболочек из сплава Э110опт часть испытаний для определения величины  $K_{II}$  проведена с помощью метода ступенчатого снижения нагрузки из-за существенной продолжительности экспериментов для этого сплава, особенно, при низких температурах. В этих экспериментах, для испытаний использовалась машина прямого ручного нагружения типа АИМА-5-2, которую обычно применяют для испытаний на ползучесть.

### 3.2 Обоснование применимости для радиальной трещины в оболочке параметров ЗГР, полученных на образцах с осевой трещиной

Исходя из напряженно-деформированного состояния, характерного для оболочки твэла, потенциальное зарождение и развитие трещины по механизму ЗГР в стенке оболочки вплоть до образования сквозного дефекта может происходить только в R направлении по (R-L) плоскости оболочки. Правомерность применения к R направлению развития трещины в оболочке результатов, полученных в экспериментах на PLT образцах с осевой трещиной, показана на рисунке 3.9 путём сопоставления опубликованных экспериментальных данных по скорости ЗГР в L и R направлениях оболочек из сплава Zircaloy-4.

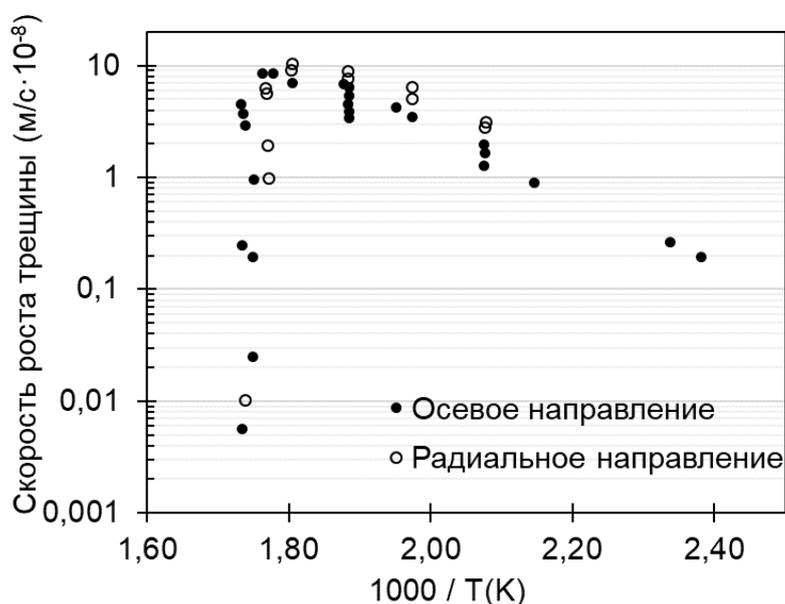


Рисунок 3.9 – Сопоставление скоростей ЗГР в L и R направлениях по R-L плоскости оболочки из сплава Zircaloy-4 [22]

В испытаниях для L направления трещины в [22] использовались PLT образцы, а для R направления трещины применялись трубчатые образцы под внутренним давлением [23]. Несмотря на различный тип образцов и свойственные им особенности процедур испытаний, значения скоростей ЗГР в L и R направлениях оболочки практически совпадают. По-видимому, и значения  $K_{II}$  в R-L плоскости образца для трещин, растущих в R и L направлениях, должны быть близкими. Такое предположение стимулировало применение PLT образцов с осевой трещиной в международном проекте МАГАТЭ 2011-2015 [143] для определения значений  $K_{II}$  в оболочках твэлов.

В подтверждение данного предположения автором впервые проведены реперные эксперименты для определения значений  $K_{II}$  по единой методике испытаний и на одном типе образцов сечением 4×4 мм с развитием трещины ЗГР в двух (R и L) направлениях по радиально-осевой плоскости разрушения в трубе. Испытывались образцы от труб давления (рисунок 3.10) из двух сплавов (Zr-2,5Nb и Э635) с близким пределом текучести ( $\sigma_{0,2}$ ), но с различным типом текстуры ( $f_R/f_T$ ) и различием в вязкости разрушения ( $dJ/da$ ) (таблица 3.2).

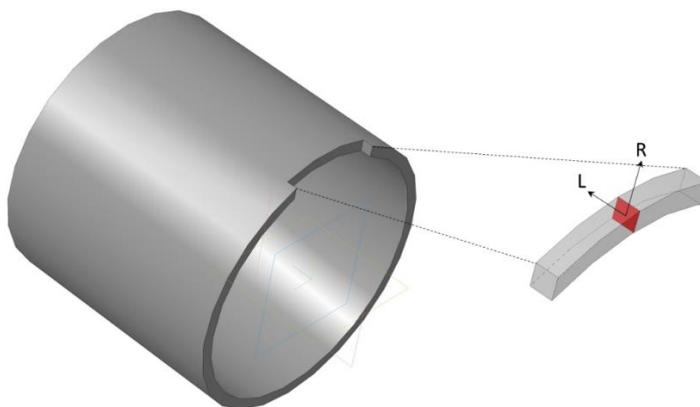


Рисунок 3.10 – Схема вырезки образца размером 4×4×24 мм из трубы давления для испытаний на ЗГР по схеме трехточечного изгиба с трещиной в радиально-осевой плоскости с осевым (L) или радиальным (R) направлением роста

Перед испытанием наводороженные образцы с надрезом подвергали циклическому нагружению на установке «INSTRON ELECTROPULS E300» с целью наведения усталостной трещины. Испытания на ЗГР проводились на универсальной серво-электронной испытательной системе «INSTRON 8861» с климатической камерой и управлением параметрами системы в среде программы WaveMatrix 1.6. Схема цикла выхода на температурный режим испытаний была аналогичной той, которая применялась для PLT образцов. Нагружение проводилось по схеме «трехточечный изгиб прямоугольного образца с краевой трещиной».

На рисунках 3.11 и 3.12 представлены эскиз прямоугольного образца для испытания по схеме «трехточечный изгиб» и внешний вид реального образца и оснастки в процессе проведения испытания, соответственно.

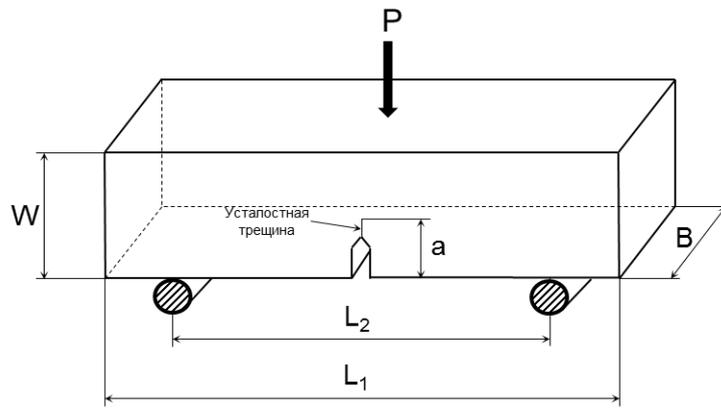


Рисунок 3.11 - Эскиз образца для испытания на трехточечный изгиб ( $L_1 = 4W$ ,  $L_2 = 4,5W$ )

[163]

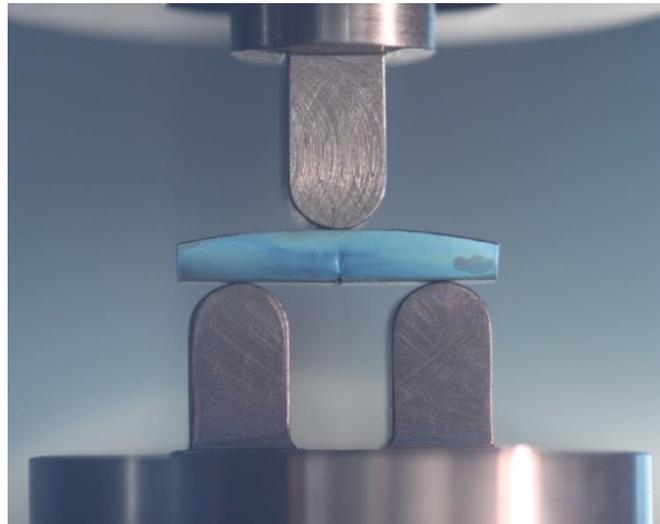


Рисунок 3.12 – Нагруженный трехточечным изгибом реальный образец в оснастке при проведении испытания на ЗГР

Эксперименты выполняли при температуре 250 °С, величина  $K_{II}$  определялась методом ступенчатого снижения нагрузки. Типичный вид диаграммы испытаний представлен на рисунке 3.13.

По окончании испытаний образец подвергался циклическому нагружению, затем разламывался и проводилось измерение длины трещины ЗГР способом, аналогичным применявшемуся для PLT образцов. Типичный внешний вид излома образца после испытаний представлен на рисунке 3.14.

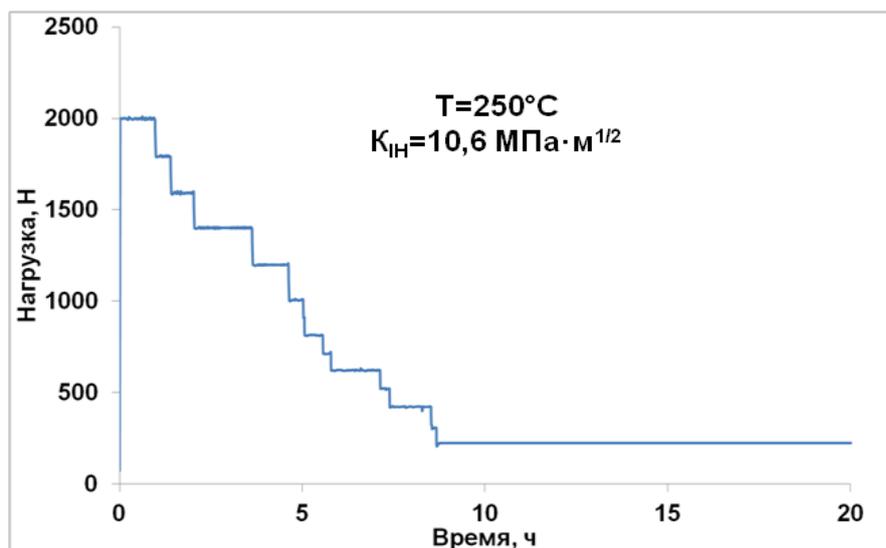


Рисунок 3.13 – Диаграмма ступенчатого снижения нагрузки при испытании для определения  $K_{IH}$  по схеме трехточечного изгиба образца трубы давления из сплава Zr-2,5Nb с радиальным направлением развития трещины

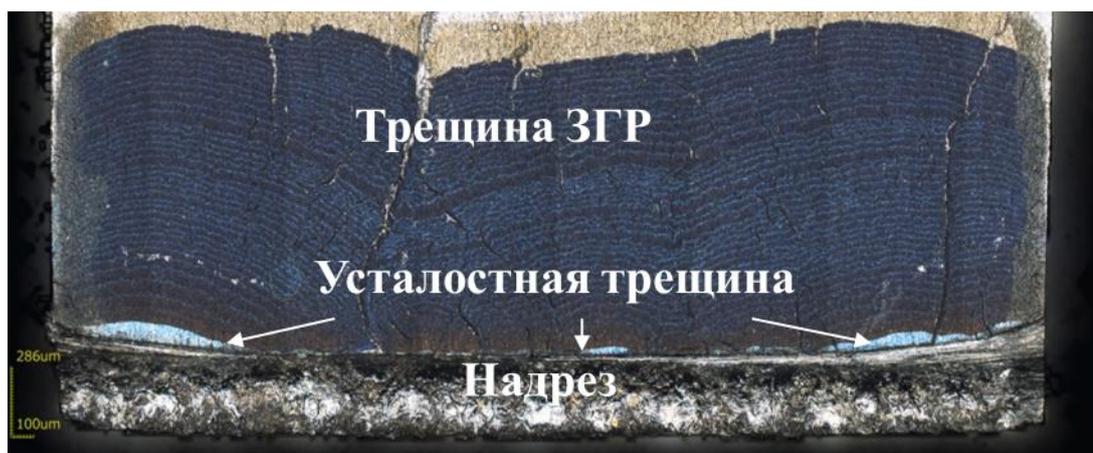


Рисунок 3.14 – Вид излома образца из сплава Zr-2,5Nb после испытания на ЗГР в осевом направлении

Значение коэффициента интенсивности напряжений  $K_I$  (МПа·√м) в вершине трещины было рассчитано по формуле [163]:

$$K_I = \frac{PL}{BW^2} (2.9(a/W)^{1/2} - 4.6(a/W)^{3/2} + 21.8(a/W)^{5/2} - 37.6(a/W)^{7/2} + 38.7(a/W)^{9/2}) \quad (3.1)$$

где  $P$  – прикладываемая нагрузка, Н;

$B$  – толщина образца, м;

$W$  – ширина образца, м;

$a$  – суммарная длина надреза, усталостной трещины и трещины ЗГР, м.

Таблица 3.2 – Результаты для величины  $K_{II}$ , полученные при 250 °С на образцах одного типа в R и L направлениях радиально-осевой плоскости трубы давления

Сплав трубы давления	$f_R/f_T$	Поперечный предел текучести при 250 °С, МПа	Вязкость разрушения ( $dJ/da$ ) при 250 °С, МПа	Направление трещины	$K_{II}$ , МПа·√м
Zr-2,5Nb	0,75	500 ± 3	342,1 ± 7,1	R	10,6
				L	9,1
Э635	1,24	509 ± 6	266,7 ± 3,9	R	6,9
				L	7,2

Из результатов, приведенных в таблице 3.2 следует, что значения величины  $K_{II}$  для трещин ЗГР растущих в R и L направлениях радиально-осевой плоскости близки между собой как для трубы с тангенциальным ( $f_R/f_T = 0,75$ ), так и для трубы с радиальным ( $f_R/f_T = 1,24$ ) типом текстуры (отличие соответствующих значений не превосходит ~16% для сплава Zr-2,5Nb и ~4,5% для сплава Э635). Следовательно, предположение о том, что испытания с трещинами, растущими в L направлении, хорошо моделируют распространение трещин в R направлении, подтверждено с достаточной степенью точности.

Таким образом, значения основных параметров ЗГР ( $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$ ), полученные в экспериментах на PLT образцах с осевой трещиной, могут применяться в расчётных обоснованиях оболочек твэлов для радиального направления распространения трещины ЗГР, по крайней мере, в качестве оценки первого порядка.

### 3.3 Выводы по главе 3

1. Разработан и протестирован на образцах оболочек твэлов из сплава Zircaloy-4 метод «постоянного перемещения» в испытаниях на ЗГР для определения порогового коэффициента интенсивности напряжений ( $K_{IN}$ ). Метод позволяет в одном эксперименте определять также скорость ЗГР и строить её зависимость от  $K_I$  в широком диапазоне значений.

2. Преимуществами метода при определении  $K_{IN}$  являются сходимость и воспроизводимость результатов, отсутствие необходимости постоянного контроля оператором параметров испытаний, сокращение времени и количества образцов на эксперименты, что крайне важно для испытаний облучённых материалов в «горячих камерах».

3. Сопоставление опубликованных данных по скорости роста трещины в R и L направлениях оболочки из сплава Zircaloy-4 и результаты экспериментов по определению  $K_{IN}$  для таких трещин в образцах одного типа из труб давления, изготовленных из двух сплавов с различными текстурой и вязкостью разрушения, показывают, что значения основных параметров ЗГР слабо зависят от направления трещины в радиально-осевой плоскости. Этот факт позволяет использовать данные для  $K_{IN}$  и  $V_{ЗГР}$ , полученные в экспериментах на РЛТ образцах с осевой трещиной, при расчётных обоснованиях стойкости к ЗГР оболочек твэлов с радиальными трещинами.

## **Глава 4. Результаты испытаний на ЗГР оболочек твэлов из сплавов циркония разных систем легирования**

Из данных, приведенных в главе 1, следует, что разрушение по механизму ЗГР в циркониевом конструктивном элементе становится возможным, когда коэффициент интенсивности напряжений ( $K_I$ ) в вершине острого дефекта превысит пороговое значение ( $K_{I\text{н}}$ ) для растрескивания гидрида, формирующегося в его окрестности. Это определяющий момент, а  $K_{I\text{н}}$  ключевой параметр в оценке стойкости материала к разрушению по механизму ЗГР. Поэтому в данной работе основное внимание было уделено испытаниям по определению  $K_{I\text{н}}$ , для чего и разработана новая методика применительно к оболочкам твэлов (глава 3). Немаловажно, что в испытаниях по определению  $K_{I\text{н}}$  с помощью данной методики можно одновременно определять и  $V_{\text{ЗГР}}$ . До проведения экспериментов по разработанной методике, группой специалистов, включая автора настоящего исследования, на образцах оболочек твэлов из четырёх циркониевых сплавов были выполнены испытания по определению только величины  $V_{\text{ЗГР}}$  по методике, описание которой дано в разделе 1.5 главы 1. Результаты таких прямых испытаний на скорость ЗГР опубликованы в работе [131] и будут использованы ниже для сопоставления с результатами, полученными для скорости ЗГР в испытаниях по разработанной методике «постоянного перемещения», позволяющей одновременно с определением  $K_{I\text{н}}$  вычислять и  $V_{\text{ЗГР}}$ .

### **4.1 Основные параметры ЗГР и их температурные зависимости**

В таблице 4.1 приведены результаты выполненных экспериментов на ЗГР с определением  $K_{I\text{н}}$  и  $V_{\text{ЗГР}}$  для образцов оболочек из исследуемых сплавов. В случае испытания при одной температуре трёх и более образцов в таблице приводится среднее значение и стандартное отклонение. Видно, что количество экспериментальных данных для образцов оболочки из сплава Э110опт заметно меньше, чем для образцов оболочек из сплавов Zircaloy-4 и Э635М. Это объясняется тем, что выполнять испытания на ЗГР образцов оболочки из сплава Э110опт даже в состоянии деформационного упрочнения существенно сложнее, несмотря на не столь большое различие в прочности (рисунок 2.1). Для образцов сплава Э110опт требуется более высокое значение исходной нагрузки (и соответственно  $K_I$ ), более длительный инкубационный период и, как следствие, существенная продолжительность экспериментов, приводившая в ряде случаев к прекращению испытания до получения желаемого результата. Кроме того, такие

эксперименты, вследствие особенностей свойств материала, выполнялись при более низких температурах, по сравнению с образцами из сплавов Zircaloy-4 и Э635М.

Таблица 4.1 - Результаты испытаний на ЗГР с определением  $K_{IИ}$  и  $V_{ЗГР}$

Температура испытания, °С	Число образцов	$K_{IИ}$ , МПа·√м		$V_{ЗГР}$ , м/с·10 <sup>8</sup>	
		Значение	СКО	Значение	СКО
Zircaloy-4					
175	1	5,2	...	- *	...
200	1	5,0	...	1,2	...
227	3	5,7	0,54	3,5	0,37
250	6	5,4	0,35	4,7	0,72
267	6	7,1	0,17	6,4	1,33
282	5	7,1	0,34	9,4	0,77
295	3	7,7	0,14	10,2	3,53
296,5	1	13,7	...	3,1	...
298	1	18,2	...	1,4	...
303	1	18,4	...	0,6	...
305	1	Нет ЗГР			
Э635М					
175	1	7,2	...	- *	...
200	1	6,7	...	0,74	...
215	2	8,1; *	...	1,53; 1,96	...
227	2	7,0; 8,0	...	2,8; 3,1	...
250	4	7,5	0,46	3,9	0,52
267	3	6,8; 7,3; *	...	3,8	0,8
275	1	9,3	...	4,5	...
280	2	7,8	...	2,6; 3,6	...
282	1	9,7	...	4,7	...
285	1	17,2	...	2,6	...
295	1	Нет ЗГР			
Э110опт					
150	1	11,8	...	- *	...
175	1	11,5	...	0,2	...
200	2	12,3; 13,7	...	0,3	...
227	1	14,3	...	0,7	...
231	2	21,1; - *	...	0,6; 0,8	...

\* не получилось определить значение  $K_{IИ}$  или  $V_{ЗГР}$  из-за сбоев при регистрации необходимых параметров испытаний

С понижением температуры прочность материала становится выше (рисунок 2.1), однако скорость роста трещины ЗГР снижается. Низкая скорость роста трещины приводит к значительному увеличению длительности испытания. Поэтому, продолжительность

экспериментов по определению  $K_{II}$  для образцов из сплава Э110опт была в разы больше, чем длительность испытаний образцов из сплавов Э635 и Zircaloy-4. Сложности с растрескиванием образцов оболочки из сплава Э110опт наблюдались уже при наведении усталостной трещины, которая росла существенно медленнее, часто с отклонениями от плоскости надреза и неравномерно на противоположных по диаметру сторонах образца. Такое поведение сплава Э110опт объясняется его высокой вязкостью разрушения, сдерживающей распространение трещины.

Процесс ЗГР в сплавах циркония, как уже отмечалось в главе 1, является термически активируемым, и скорость роста трещины на температурной зависимости в широком интервале температур до значения  $T_{max}$  подчиняется соотношению Аррениуса (1.2). Выше  $T_{max}$  наблюдается резкое отклонение от уравнения (1.2) и быстрое снижение скорости роста трещины ЗГР в узком температурном интервале вплоть до прекращения растрескивания при  $T_{ВТП}$ .

На рисунках 4.1а и 4.1б для исследованных сплавов приведены температурные зависимости скорости роста трещины ЗГР, построенные по данным таблицы 4.1 и результатам прямых экспериментов по определению скорости ЗГР [131]. В прямых испытаниях на скорость ЗГР образец находится под нагрузкой постоянной величины, и трещина растёт в условиях непрерывного увеличения  $K_I$  (на рисунках 4.1а и 4.1б этим данным соответствуют точки со стрелкой вверх  $\uparrow K_I$ ). В испытаниях по определению  $K_{II}$ , наоборот, трещина ЗГР продвигается в условиях постепенного уменьшения  $K_I$  (на рисунках 4.1а и 4.1б этим данным соответствуют точки со стрелкой вниз  $\downarrow K_I$ ). При этом исходная величина  $K_I$  в обоих случаях была примерно одинаковая. Видно, что значения  $V_{ЗГР}$ , полученные в результате испытаний по определению  $K_{II}$  и при прямых экспериментах по определению скорости ЗГР, хорошо ложатся на одну температурную зависимость для каждого из сплавов. Таким образом, подтверждается постоянство величины скорости ЗГР на этапе стабильного роста трещины в диапазоне между  $K_{II}$  и  $K_{IC}$ .

Построенные зависимости для трёх сплавов имеют подобный вид, но с различиями в значениях температур максимальной скорости роста трещины, а также в уровне значений и углах наклона прямых для  $V_{ЗГР}$  в температурном интервале зависимости Аррениуса. При этом наиболее существенное различие наблюдается для сплава Э110опт, у которого скорости ЗГР при всех температурах значительно меньше, что свидетельствует о его более высоком сопротивлении гидридному растрескиванию. Рассчитанные из уравнения (4.1) энергии активации ЗГР для оболочек из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт имеют значения 57, 49 и 43 кДж/моль соответственно, характеризуя снижение температурной зависимости  $V_{ЗГР}$  сплавов в приведенной последовательности. Температуры  $T_{max}$ , ниже

которых  $V_{ЗГР}$  подчиняется соотношению (4.1), составляют для Zircaloy-4, Э635М и Э110опт значения 292°C, 280°C и 231°C соответственно. Выше указанных температур скорости роста трещины ЗГР резко снижаются на 2-3 порядка в сравнительно узком температурном интервале, составляющем до 15°C для сплавов Zircaloy-4 и Э635М, и порядка 30°C для сплава Э110опт. При дальнейшем снижении  $V_{ЗГР}$  до нуля оценены значения верхних температурных пределов ( $T_{ВТП}$ ) для ЗГР оболочек из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, составляющие соответственно 320, 310 и 265 °C. Выше указанных значений для  $T_{ВТП}$  оболочки проявляют иммунитет к ЗГР.

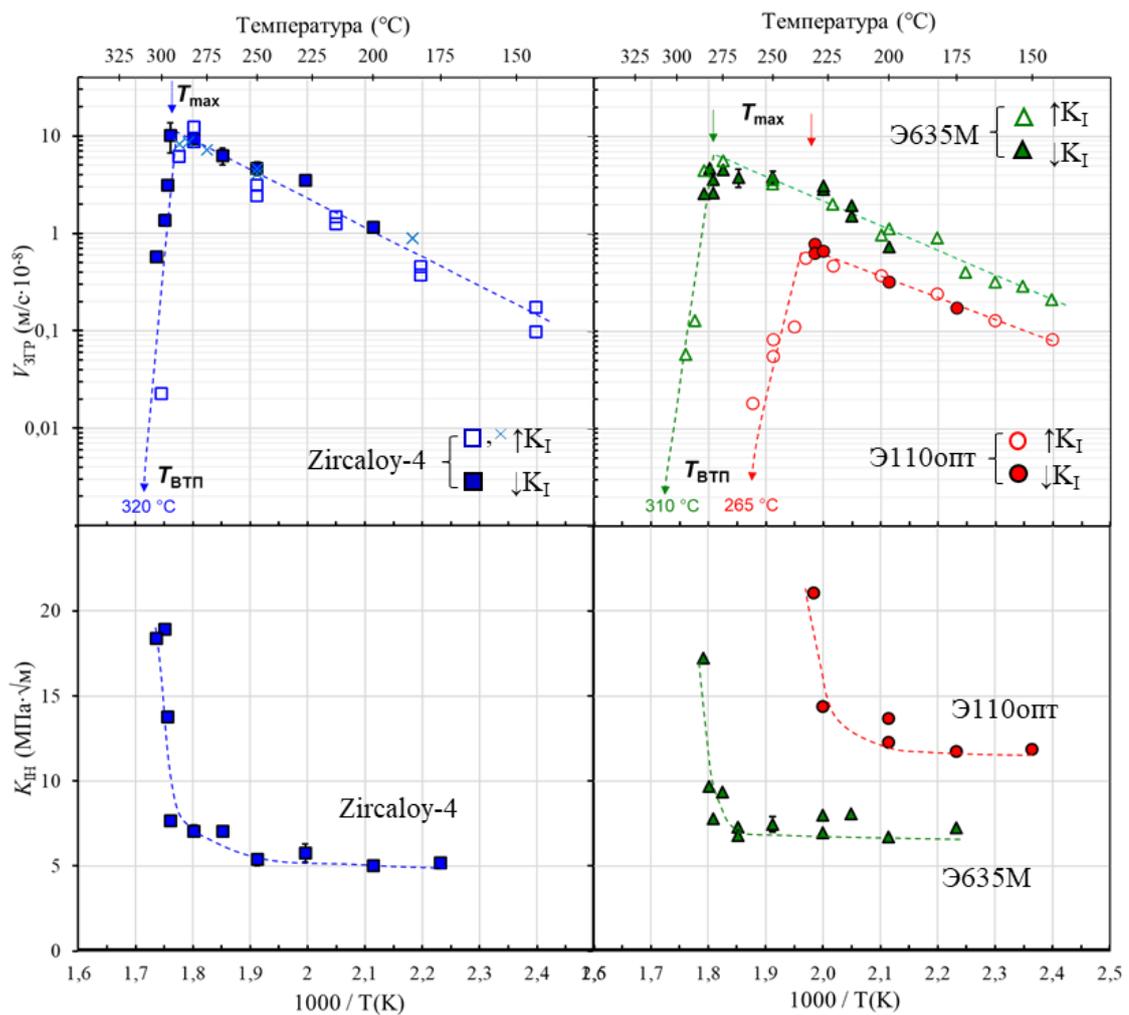


Рисунок 4.1 – Температурные зависимости  $V_{ЗГР}$  и  $K_{II}$  для оболочек твэлов из исследуемых сплавов

На рисунках 4.1в и 4.1г по данным таблицы 4.1 для сплавов построены температурные зависимости  $K_{II}$  в аналогичных координатах по температуре, как и для  $V_{ЗГР}$  на рисунках 4.1а и 4.1б. В целом температурные зависимости  $K_{II}$  для трёх сплавов подобны, как и температурные зависимости  $V_{ЗГР}$ . Полученные корреляции между  $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$  показывают,

что в температурном интервале Аррениуса для скорости роста трещины экспериментальные значения для  $K_{II}$  имеют слабую зависимость от температуры, что согласуется с результатами теоретических исследований [164]. Минимальное значение  $K_{II}$  равное  $5 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$  в этом интервале температур показывают образцы из сплава Zircaloy-4. Для сплава Э635М минимальное значение  $K_{II}$  составляет  $6,7 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ . Для сплава Э110опт минимальное значение  $K_{II}$  существенно больше и равно  $11,5 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ .

Для оболочек из сплавов Zircaloy-4 и Э635М выше температуры начала резкого снижения скорости роста трещины  $K_{II}$  резко возрастает, подтверждая результаты [17], полученные обработкой большого массива данных из различных лабораторий для двух вариантов оболочек из сплава Zircaloy-4. Аналогичное поведение ранее было показано и для труб давления из сплава Zr-2,5Nb [19,20,115]. Для оболочек из сплава Э110опт такое возрастание  $K_{II}$  начинается на несколько градусов раньше достижения температурного максимума для скорости ЗГР.

Численные значения для энергий активации ЗГР, температур  $T_{\text{max}}$  и  $T_{\text{ВТП}}$ , определённые по температурным зависимостям скорости роста трещины ( $V_{\text{ЗГР}}$ ) на рисунках 4.1а и 4.1б для трёх исследованных сплавов, а также минимальные величины  $K_{II}$  для них, сведены в таблице 4.2.

Таблица 4.2 – Характеристики ЗГР для необлучённых оболочек из исследованных сплавов

Сплав	Zircaloy-4	Э635М	Э110опт
Q, кДж/моль	57	49	43
$T_{\text{max}}$ , °C	292	280	231
$T_{\text{ВТП}}$ , °C	320	310	265
$K_{II}(\text{min})$ , МПа $\cdot\sqrt{\text{м}}$	5	6,7	11,5

Из данных, представленных на рисунке 4.1 и в таблице 4.2, следует существенное преимущество сплава Э110опт по стойкости к ЗГР – он имеет наиболее высокое минимальное значение  $K_{II}$ , низкую скорость ЗГР и меньшую её зависимость от температуры, а также наиболее низкую температуру иммунитета к такому механизму разрушения.

#### 4.2 Зависимость скорости ЗГР от прочности

Основными источниками температурной зависимости ЗГР являются предельная растворимость и диффузионная подвижность водорода в циркониевом сплаве, а также

прочность материала. Температурная зависимость предельной растворимости водорода малочувствительна к легированию или микроструктуре сплава [45]. Это подтверждается и результатами собственных исследований автора [44,165], показавших, что в пределах погрешности экспериментов значения предельной растворимости водорода для сплавов Э110опт и Э635 совпадают со значениями для зарубежных сплавов циркония. В свою очередь, диффузионная подвижность водорода может зависеть от микроструктуры, как например, в двухфазном сплаве Zr-2,5Nb, вследствие более высокого коэффициента диффузии водорода в протяжённых прослойках  $\beta$ -Zr фазы, что отмечалось выше в главе 1. Исследованные в настоящей работе оболочки из трёх сплавов все имеют однофазную циркониевую матрицу с частицами интерметаллидов или  $\beta$ -Nb, поэтому значения диффузионной подвижности для них можно считать одинаковыми.

Таким образом, наблюдаемые на рисунках 4.1а и 4.1б температурные зависимости  $V_{ЗГР}$  сплавов, и их различия, в большей степени, могут быть связаны с прочностью сплавов. Такой подход часто применяется в практике исследований температурной зависимости скорости ЗГР [131,132,142]. Для этого используют, предложенную в [166], объединённую для испытываемых материалов зависимость от прочности скорости ЗГР, нормированной на предельную растворимость ( $C$ ) и диффузионную подвижность ( $D$ ) водорода в цирконии в виде:

$$\ln \left( \frac{V_{ЗГР}}{C \cdot D} \right) \nu S \sigma_B, \quad (4.1)$$

где  $C = 1,2 \cdot 10^5 \exp(-35800/RT)$  [167];

$$D = 2,17 \cdot 10^{-7} \exp(-35100/RT) [168].$$

На рисунке 4.2 представлены соответствующие экспериментальные точки для трех исследованных сплавов (в температурных интервалах Аррениуса на рисунках 4.1а и 4.1б) и корреляционные зависимости, соответствующие формуле (4.1). Значения предела прочности оболочек из каждого сплава для конкретной температуры испытаний определены по рисунку 2.1.

Видно, что общая для всех сплавов зависимость (рисунок 4.2а) отражает тенденцию снижения скорости ЗГР с уменьшением прочности материала оболочек, однако такая объединённая зависимость слабая ( $R^2=0,51$ ). Разделение зависимостей для каждого сплава в отдельности даёт также слабую зависимость для сплава Zircaloy-4 ( $R^2=0,60$ ) (рисунок 4.2б). А для ниобий-содержащих сплавов корреляционная связь между нормированной скоростью ЗГР и пределом прочности сплава является существенно более сильной. Для сплава Э635М  $R^2=0,86$  (рисунок 4.2в), а для сплава Э110опт  $R^2=0,97$  (рисунок 4.2г). При этом, коэффициент наклона линии регрессии увеличивается в ряду сплавов

Zircaloy-4, Э635М, Э110опт, характеризуя возрастание зависимости нормированной скорости ЗГР от прочности, и коррелируя с уменьшением энергии активации ЗГР для сплавов в температурных интервалах Аррениуса на рисунках 4.1а и 4.1б.

По-видимому, предложенная в [166] корреляционная зависимость нормированной скорости ЗГР от прочности материала, разработанная для материала труб давления из сплава Zr-2,5Nb, не является универсальным законом для сплавов разных систем легирования со свойственной каждому сплаву своей кинетикой развития трещины ЗГР.

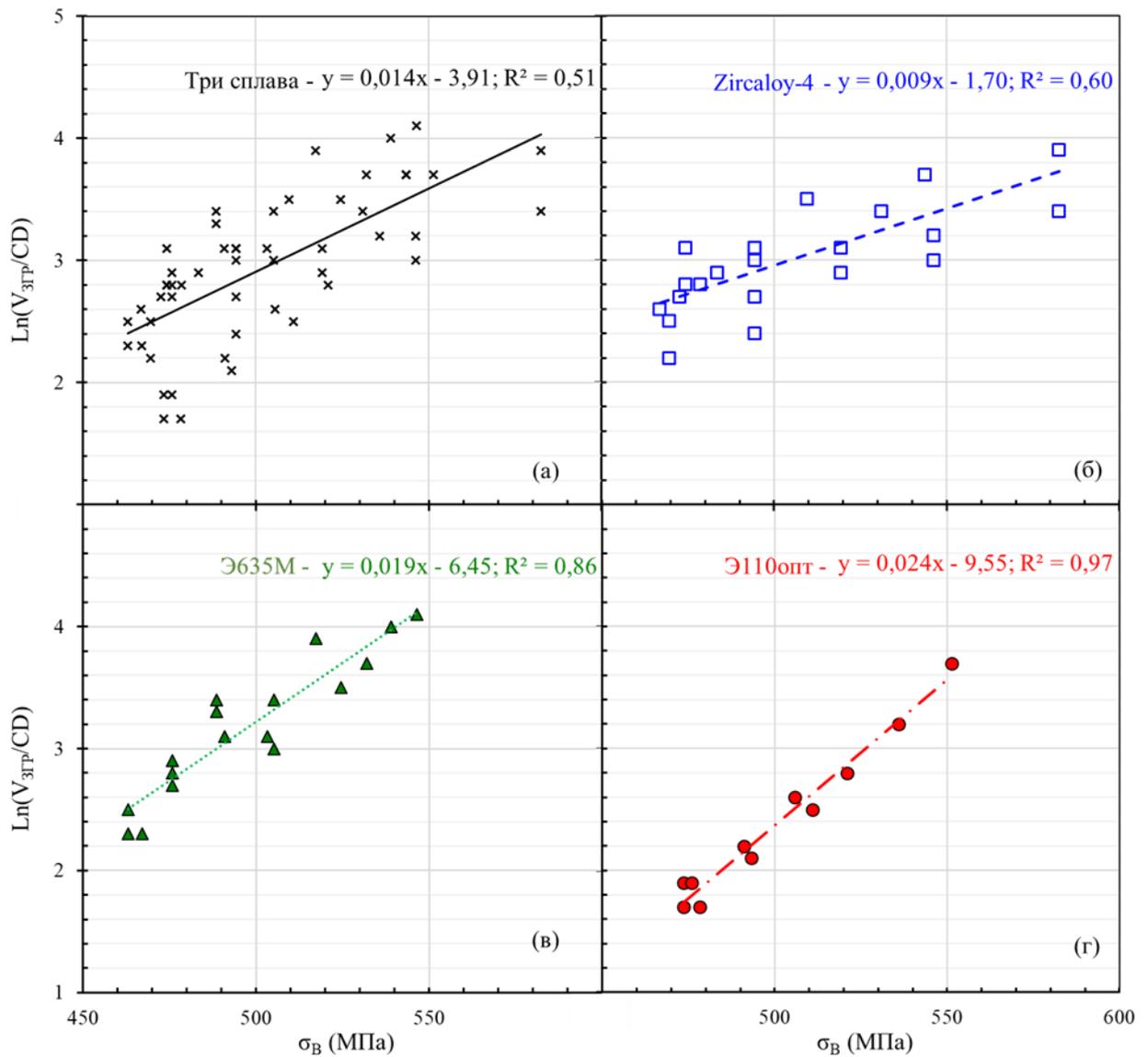


Рисунок 4.2 - Зависимость нормализованной скорости ЗГР от предела прочности оболочечных труб (значения  $V_{\text{ЗГР}}$  для сплавов соответствуют температурным интервалам Аррениуса на рисунках 4.1а и 4.1б)

### 4.3 Выводы по главе 4

На необлучённых оболочках твэлов в сопоставимых состояниях холодной деформации и снятия напряжений из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, представляющих три системы легирования циркония, по единой методике определены пороговый коэффициент интенсивности напряжений для ЗГР ( $K_{II}$ ), скорость стабильного роста трещины ( $V_{ЗГР}$ ) и их температурные зависимости. Для всех сплавов температурные зависимости  $V_{ЗГР}$  и  $K_{II}$  имеют подобный вид, но различаются количественно. Максимальная температура ( $T_{max}$ ), ниже которой  $V_{ЗГР}$  подчиняется соотношению Аррениуса, а  $K_{II}$  слабо зависит от температуры при минимальных значениях 5; 6,7 и 11,5 МПа·√м соответственно для сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, составляет для них значения 292, 280 и 231°C. Выше указанных температур  $V_{ЗГР}$  резко снижается на 2-3 порядка с сопутствующим увеличением в 2-3 раза  $K_{II}$  в интервале 15°C для Zircaloy-4 и Э635М и 30°C для Э110опт, приближаясь при дальнейшем снижении до нуля к верхнему температурному пределу ( $T_{ВТП}$ ) для ЗГР, значения которого для исследуемых сплавов составляют по оценкам 320, 310 и 265 °C, соответственно. Выше  $T_{ВТП}$  оболочки проявляют иммунитет к ЗГР.

Энергии активации ЗГР составили значения 57, 49 и 43 кДж/моль соответственно для Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, характеризуя снижение температурной зависимости  $V_{ЗГР}$  сплавов в приведенной последовательности. При этом зависимость от прочности скорости ЗГР, нормированной на предельную растворимость и диффузионную подвижность водорода, для сплавов в этой последовательности возрастает.

Таким образом, по результатам испытаний с определением основных параметров ЗГР ( $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$ ) и их температурных зависимостей показано, что по возрастанию стойкости к замедленному гидридному растрескиванию исследованные сплавы располагаются в ряд Zircaloy-4, Э635М, Э110опт, с очевидным превосходством последнего.

Полученные экспериментальные результаты по стойкости к ЗГР циркониевых сплавов разных систем легирования целесообразно использовать в техническом проектировании твэлов при обосновании их работоспособности в реакторах ВВЭР/PWR с учётом состава сплава и структурно-фазового состояния оболочки, а также учитывать при разработке новых модификаций сплавов для применения в качестве конструктивных элементов ТВС с высоким сопротивлением такому виду разрушения.

## **Глава 5. Фрактографические особенности ЗГР оболочек твэлов из сплавов циркония**

Как показано в главе 1, прерывистый процесс замедленного гидридного растрескивания сопровождается образованием в изломе на поверхности трещины характерного рельефа в виде чередования участков хрупкого разрушения гидридов критического размера и вязких перемычек циркониевой матрицы между ними. Эти регулярно расположенные перемычки, параллельные основному фронту магистральной трещины, названы бороздками и являются фундаментальной характеристикой ЗГР.

Настоящая глава посвящена сравнительным фрактографическим исследованиям изломов образцов оболочечных труб из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт после испытаний по определению  $K_{IH}$  и  $V_{ЗГР}$  с целью выявления различий и особенностей в строении изломов трещины ЗГР для сплавов разных систем легирования циркония. При выполнении этих работ основной целью был поиск взаимосвязи бороздчатого рельефа с легирующим составом сплавов, их стойкостью к ЗГР, критическим размером гидрида для растрескивания и величиной коэффициента интенсивности напряжений.

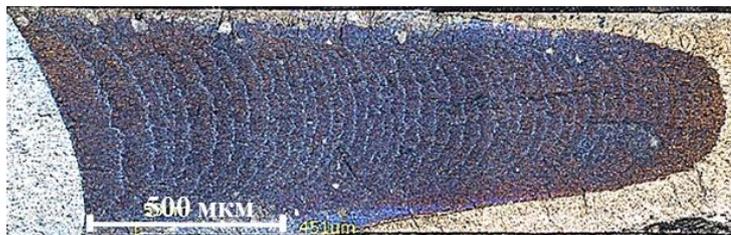
Кроме того, результаты исследований позволили оценить в экспериментах на ЗГР для тонкостенных оболочечных труб из трёх сплавов соблюдение условий линейно-упругой механики разрушения (ЛУМР) по состоянию плоской деформации в вершине трещины.

Исходя из имеющихся на сегодняшний день возможностей, фрактографические исследования проведены автором с использованием стерео и оптической микроскопии, что, однако, позволило выявить различия и особенности трещин ЗГР для оболочек из сплавов циркония разных систем легирования.

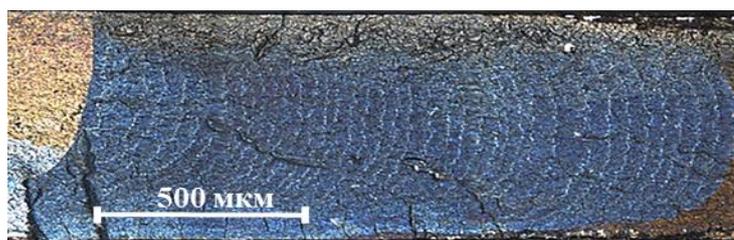
### **5.1 Бороздчатый рельеф поверхности трещин ЗГР в оболочках твэлов**

Наиболее отчётливо бороздки проявлялись в изломах образцов сплава Э110опт, легированного ниобием. При этом чёткий рисунок бороздок, практически по всей длине поверхности трещины ЗГР, наблюдался как в прямых испытаниях по определению скорости ЗГР (рисунок 5.1а), так и в испытаниях по определению  $K_{IH}$  (рисунок 5.1б). В изломах образцов этого сплава, по сравнению с двумя другими сплавами, расстояние между бороздками наибольшее из-за большего критического размера гидрида в вершине трещины. Особенно отчётливо увеличенная протяжённость растрескивающегося гидрида проявлялась на начальном участке роста трещины в испытаниях на скорость ЗГР.

Расстояние между бороздками при старте трещины ЗГР на этом участке в отдельных случаях составляло до 100 мкм, что зафиксировано в испытаниях при температуре 250°C.



а

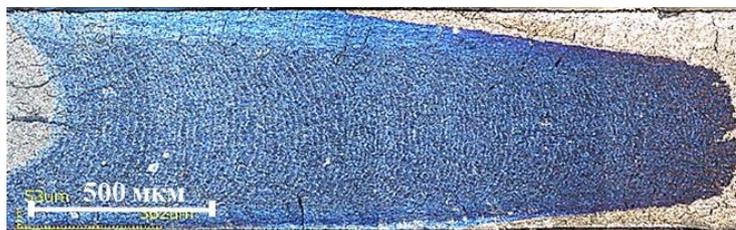


б

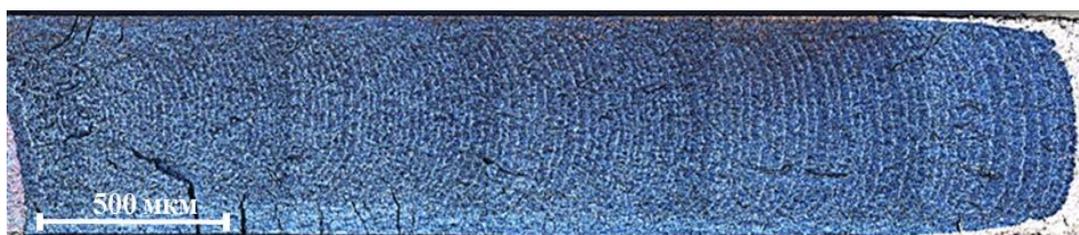
Рисунок 5.1 – Бороздки на поверхности трещин образцов из сплава Э110опт после испытаний по определению скорости ЗГР (а) и  $K_{II}$  (б) при температуре 232°C и 231°C, соответственно (рост трещин слева направо)

В сплаве Э635М (в составе которого есть ниобий и олово) критическая длина гидроида в вершине трещины и соответственно расстояния между бороздками заметно меньше. Однако, в большинстве случаев бороздки, наблюдаются в световом микроскопе достаточно отчётливо, как в прямых испытаниях по определению скорости ЗГР (рисунок 5.2а), так и в испытаниях по определению  $K_{II}$  (рисунок 5.2б). На рисунке 5.2в представлены результаты измерений межбороздчатого расстояния в зависимости от локальной величины  $K_I$ , меняющейся в процессе экспериментов по мере роста трещины. По рисункам 5.2а и 5.2в видно, что для сплава Э635М при испытаниях по определению скорости ЗГР на второй половине длины трещины с увеличением  $K_I$  расстояние между бороздками заметно уменьшается. Когда межбороздчатое расстояние достигает величины менее 10 мкм (после 2/3 длины трещины при  $K_I > 23-25 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ ), чёткая картина бороздок в световом микроскопе пропадает, и становятся видны только их очертания. В испытаниях по определению величины  $K_{II}$  образцов из сплава Э635М ситуация с бороздками противоположная, расстояние между ними на второй половине длины трещины по мере приближения  $K_I$  к  $K_{II}$

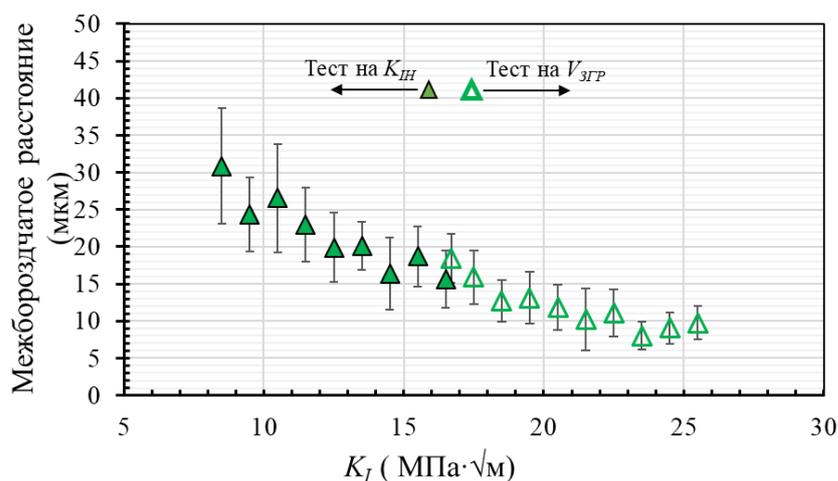
возрастает до среднего значения 30 мкм (рисунок 5.2в) и качество проявления бороздок улучшается (рисунок 5.2б).



а



б



в

Рисунок 5.2 – Бороздки на поверхности трещин сплава Э635М после испытаний по определению скорости ЗГР (а) и  $K_{IH}$  (б) при 267°C (рост трещин слева направо) и зависимость межбороздчатого расстояния от  $K_I$  для этих трещин (стрелками показано направление изменения  $K_I$  в экспериментах) (в)

По данным [131] после испытаний по определению скорости роста трещины ЗГР при 250°C среднее расстояние между бороздками в образцах из сплава Э635М составляет измерения межбороздчатого расстояния в образцах этих сплавов после испытаний по определению скорости роста трещины ЗГР при 250°C в рамках настоящей работы показали,

что среднее расстояние между бороздками в сплаве Э635М составляет 12 мкм, а в сплаве Э110опт 34 мкм. Таким образом, в среднем расстояние между бороздками в сплаве Э635М в 2,6 раза меньше, чем в сплаве Э110опт.

В сплаве Zircaloy-4 (без ниобия в составе), критическая длина гидроксида в вершине трещины уменьшается более существенно, и наблюдение бороздок в образцах после испытаний по определению скорости роста трещины ЗГР с использованием световой микроскопии практически невозможно (рисунок 5.3а), что показано ранее [22,131]. В экспериментах по определению  $K_{IH}$  на образцах из сплава Zircaloy-4 при температуре 267°C очертания бороздок начинают обнаруживаться в отдельных участках завершающего этапа роста трещины ЗГР с приближением к  $K_{IH}$ , когда межбороздчатое расстояние возрастает (рисунок 5.3б). По внешнему виду в световом микроскопе этот участок трещины ЗГР в сплаве Zircaloy-4 похож на конечный участок трещины ЗГР образца из сплава Э635М при испытании на скорость ЗГР, когда расстояние между бороздками становится менее 10 мкм (рис. 5.2а). Поэтому, можно заключить, что расстояние между бороздками в сплаве 4, например, при температуре 267°C, в 3 раза меньше, чем в Э635М, а по сравнению со сплавом Э110опт меньше в 5-6 раз.



а



б

Рисунок 5.3 – Трещины ЗГР в образцах из сплава Zircaloy-4 после экспериментов по определению скорости ЗГР (а) и  $K_{IH}$  (б) при температуре 267°C (рост трещин слева направо)

Следует отметить, что сплавы систем Zr-Nb-Sn-Fe и Zr-Sn-Fe с оловом в твёрдом растворе и частицами интерметаллидов в микроструктуре, обладают более низкими значениями вязкости разрушения, по сравнению с Zr-Nb сплавами. Пониженная вязкость

разрушения сплавов проявляется в снижении критического размера гидроксида в вершине трещины ЗГР, что отражается на уменьшении расстояния между бороздками в изломе, как показано в [131]. Соответственно, и величина  $K_{IH}$  такого материала низкая. Влияние вязкости разрушения на величину  $K_{IH}$  в работе [106] и в таблице 3.2 показано на примере образцов труб давления из сплавов Zr-2,5Nb и Э635, имеющих близкую прочность, но различающихся вязкостью. Так, с увеличением параметра вязкости разрушения  $dJ/da$  с 220 МПа (для Э635) до 360 МПа (для Zr-2,5Nb)  $K_{IH}$  линейно возрастает с 6 до 9,5 МПа·√m для образцов, испытанных при температуре 250 °С [106]. Кроме того, в сплавах с низкой вязкостью разрушения высота вязких перемычек между растрескиваниями гидридов естественно меньше, что также влияет на проявление бороздок при наблюдении в световом микроскопе.

Таким образом, сопоставляя результаты фрактографического анализа с данными по  $K_{IH}$  и  $V_{ЗГР}$  на рисунке 4.1, можно заключить, что чёткий бороздчатый рельеф трещины ЗГР с наибольшим расстоянием между бороздками является индикатором высокой стойкости сплава Э110опт к разрушению по механизму замедленного гидридного растрескивания, по-видимому, вследствие более высокой вязкости разрушения сплавов системы Zr-Nb.

## 5.2 Выполнение условий линейно-упругой механики разрушения по состоянию плоской деформации при испытаниях оболочек на ЗГР

Необходимо отметить и наблюдаемые различия в форме фронта трещин ЗГР для образцов после прямых испытаний по определению скорости ЗГР и после испытаний по определению  $K_{IH}$ . Различия обусловлены тем, что испытания на скорость ЗГР проводятся с фиксированной нагрузкой, при которой значение  $K_I$  для старта трещины ЗГР в 2-3 раза превышает  $K_{IH}$ . По мере роста трещины значение  $K_I$  ещё больше увеличивается, что приводит к проявлению для фронта трещины ЗГР «туннельного» эффекта, когда длина трещины у боковых поверхностей образца меньше, чем в его центральной части, что отчётливо видно на рисунках 5.1а, 5.2а и 5.3а.

«Туннельный» эффект появляется, когда в вершине трещины не выполняется условие (критерий) линейно-упругой механики разрушения (ЛУМР) для состояния плоской деформации [94,143]:

$$K_I < \sigma_s \sqrt{t/2,5} \quad (5.1)$$

где  $\sigma_s$  – прочность материала оболочки;

$t$  – толщина оболочки.

В испытаниях по определению скорости ЗГР, особенно на заключительном этапе, когда существенно возрастает  $K_I$ , избежать несоблюдения условия (5.1) для тонкостенных образцов из оболочечных труб практически невозможно. Вблизи стенок образца величина напряжений, направленных перпендикулярно оси роста трещины, заметно ниже, по сравнению с центральной частью [169,170]. При таком распределении напряжений количество и протяженность гидридов, образовавшихся в результате диффузии водорода к вершине трещины вблизи стенок образца, могут быть недостаточными для их растрескивания.

В испытаниях по определению  $K_{IH}$  нагрузка, приложенная к образцу, и соответственно величина  $K_I$  снижаются по мере продвижения трещины. В этом случае, если с приближением к  $K_{IH}$  критерий (5.1) выполняется, то «туннельный» эффект фронта трещины отсутствует. При этом также наблюдается увеличение критического размера гидрида в вершине трещины, в результате чего расстояние между бороздками становится больше (рисунки 5.1б и 5.2б). По этой причине, пусть недостаточно чётко, но всё же наблюдаются бороздки в изломе трещины ЗГР в образце из сплава Zircaloy-4 (рисунок 5.3б).

«Туннельный» эффект из-за невыполнения критерия ЛУМР для трещины ЗГР при испытаниях по определению  $K_{IH}$  начинает проявляться (особенно для сплава Э110опт) при температурах вблизи и выше температурного максимума для скорости ЗГР, когда  $K_{IH}$  начинает резко возрастать, что показано на рисунке 5.4 для сплавов Э635М и Zircaloy-4. При этом, чем на большую величину возрастает  $K_{IH}$  по сравнению с его минимальным значением для данного сплава, тем в большей степени проявляется «туннельный» эффект.

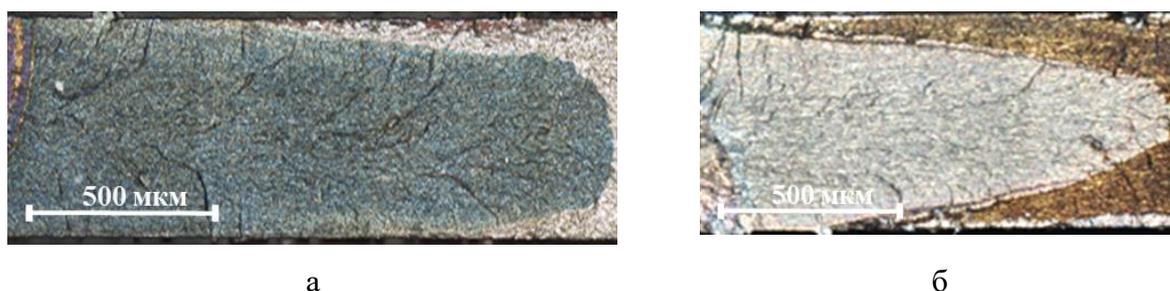


Рисунок 5.4 - «Туннельный» эффект формы фронта трещин ЗГР в испытаниях по определению  $K_{IH}$  (рост трещин слева направо): а - Э635М (282°С,  $K_{IH} = 9,7 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ ); б – Zircaloy-4 (298°С,  $K_{IH} = 18,2 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ )

Соблюдение критерия ЛУМР можно оценить, подставляя в выражение (5.1) значения прочности для материала исследуемых оболочечных труб толщиной 0,57 мм, приведенные на рисунке 2.1. Выполнение критерия ЛУМР соблюдается и величина  $K_{IH}$  применима к

исследуемому материалу, если полученное значение находится ниже ограничительной линии на рисунке 5.5.

Из вышеизложенного, можно заключить, что для оболочечных труб из сплавов Zircaloy-4 и Э635М минимальные значения  $K_{II}$  (5 и 6,7 МПа·√м соответственно) являются достоверными, так как получены в условиях выполнения критерия (5.1). Для оболочечной трубы из сплава Э110опт при определении минимального значения  $K_{II}$  (11,5 МПа·√м) критерий (5.1) не выполняется. Вместе с тем, в этих экспериментах трещина ЗГР росла практически без «туннельного» эффекта (рисунок 5.6) и по форме близка к трещинам ЗГР в испытаниях по определению  $K_{II}$  с соблюдением критерия (5.1) для сплавов Э635М (рисунок 5.2б) и Zircaloy-4 (рисунок 5.3б).

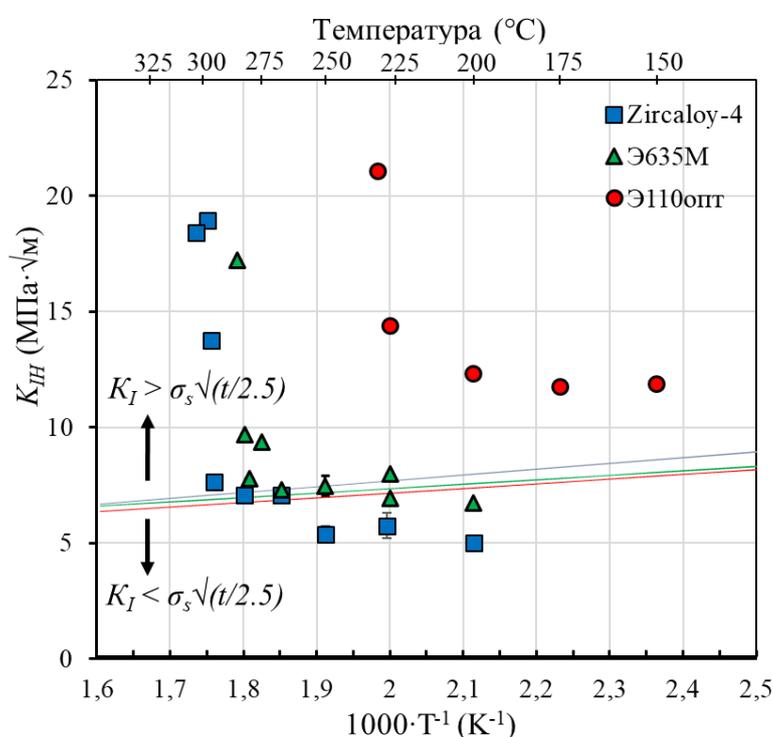


Рисунок 5.5 - Оценка выполнения условия ЛУМР при испытаниях по определению  $K_{II}$  в образцах оболочек из трёх сплавов циркония



Рисунок 5.6 – Трещина ЗГР в образце из сплава Э110опт после испытания по определению  $K_{II}$  при 150°C (рост трещины слева направо)

Таким образом, полученный в сравнительных экспериментах на PLT-образцах тонкостенных оболочек из сплава Э110опт минимальный результат для  $K_{II}$  является оценочным значением действительной величины этого параметра для данного материала. С целью более корректного определения величины  $K_{II}$ , в подтверждение полученных результатов, необходимо использовать в испытаниях на ЗГР образцы из сплава Э110опт большей толщины (по оценкам не менее 1,5 мм) для соблюдения критерия ЛУМР.

### 5.3 Выводы по главе 5

1. С помощью фрактографических исследований в световом микроскопе образцов оболочечных труб из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт после испытаний на ЗГР показано наличие на поверхности изломов регулярно расположенных бороздок, являющихся вязкими перемычками между хрупко разрушенными гидридами критического размера. Для исследованных сплавов обнаружены следующие особенности трещин ЗГР:

- на поверхности трещин ЗГР образцов из сплава Э110опт бороздки отчётливо видны, расстояния между ними наибольшие, по сравнению с двумя другими сплавами;

- для трещин ЗГР в образцах из сплава Э635М расстояния между бороздками в 2,6 раза меньше, но бороздки наблюдаются достаточно отчётливо, особенно, в испытаниях по определению  $K_{II}$ ;

- в изломах трещины ЗГР образцов из сплава Zircaloy-4 бороздчатый рельеф практически не проявляется, вследствие значительно меньшего расстояния между бороздками.

Чёткий бороздчатый рельеф трещины ЗГР с наибольшим расстоянием между бороздками является индикатором высокой стойкости циркониевого сплава к замедленному гидридному растрескиванию.

2. Для оболочечных труб из сплавов Zircaloy-4 и Э635М минимальные значения  $K_{II}$ , 5 и 6,7 МПа $\cdot\sqrt{м}$ , соответственно) являются достоверными, так как получены при выполнении в испытаниях критерия ЛУМР по состоянию плоской деформации в вершине трещины, не имеющей «туннельного» эффекта. Для оболочечной трубы из сплава Э110опт при определении минимального значения  $K_{II}$  (11,5 МПа $\cdot\sqrt{м}$ ) трещина ЗГР росла без «туннельного» эффекта, что даёт основание принять этот результат в качестве оценки действительного значения при проведении сравнительных экспериментов для нескольких сплавов на одинаковых тонкостенных образцах.

## Глава 6. Прогнозная оценка ЗГР оболочек твэлов из сплавов циркония при эксплуатации и сухом хранении отработавших ТВС

### 6.1 Вероятность ЗГР оболочек твэлов при эксплуатации в реакторе

Для реализации ЗГР в оболочке из циркониевого сплава, имеющей острый дефект и поглощённый водород, необходимо одновременное выполнение следующих основных условий:

- 1)  $C_H > C^{TSSP}$ , для образования гидроксида локальная концентрация водорода в объёме оболочки у вершины острого дефекта должна превышать предел растворимости в сплаве;
- 2)  $T < T_{ВТП}$ , температура оболочки должна быть ниже предельной температуры, выше которой наблюдается иммунитет к ЗГР;
- 3)  $K_I > K_{И}$ , напряжения в оболочке должны быть такими, чтобы коэффициент интенсивности напряжений  $K_I$  в вершине острого дефекта превысил  $K_{И}$ .

Средняя температура оболочки твэла при нормальной эксплуатации в реакторах с водой под давлением составляет 350-380 °С. Исходя из вида температурной зависимости  $V_{ЗГР}$  (см. рисунок 4.1) следует, что чем выше температура оболочки твэла, тем вероятнее проявление иммунитета к ЗГР у циркониевого сплава. Поэтому для прогноза вероятности ЗГР в оболочках твэлов реакторов ВВЭР / PWR примем за номинальную температуру их эксплуатации значение 350 °С (нижнюю границу средней температуры оболочки) и рассмотрим выполнение указанных выше условий.

*Выполнение условия  $C_H > C^{TSSP}$*

Когда предел растворимости водорода (TSS) в оболочке из циркониевого сплава превышен, в ней выделяются гидриды. Растворимость водорода в цирконии имеет явный гистерезис. Для данной концентрации водорода гидриды при нагреве растворяются при более высокой температуре (TSSD), чем выделяются при охлаждении (TSSP). Пределы растворимости TSSP и TSSD в исследуемых сплавах, приведены на рисунке 6.1 по результатам работ [42,44,165].

В реакторе, когда свежее топливо начинает нагреваться до температуры 350 °С в циркониевой оболочке исходная концентрация водорода ( $C_H$ ) не превышает 15 ppm [131] (рисунок 6.1, точка А). При этой температуре выпадение гидридов в оболочке будет возможно только когда  $C_H$ , вследствие поглощения водорода в результате коррозии, достигнет точки В на линии TSSP, что соответствует примерно 200 ppm. В лабораторных условиях такое состояние циркониевого материала достигается нагревом предварительно

гидрированного образца до высокой температуры, при которой  $C_H$  соответствует точке С на линии TSSD (рисунок 6.1). Затем образец охлаждают до температуры испытаний (точка В) для начала выпадения гидридов, обеспечивая, таким образом, максимальную скорость роста трещины.

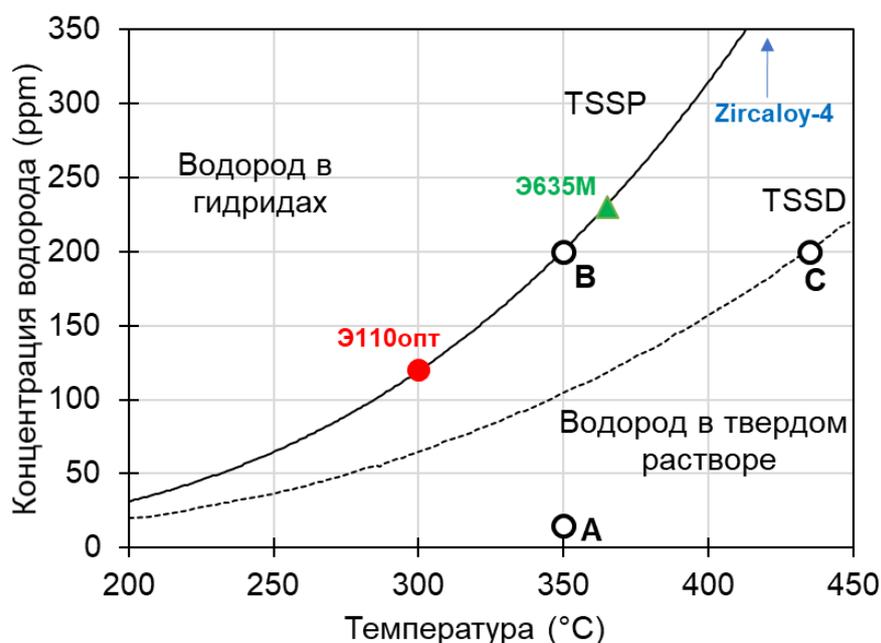


Рисунок 6.1 - Пределы растворимости водорода в циркониевом материале при охлаждении с выпадением гидридов (TSSP) и при нагревании с растворением гидридов (TSSD)

Фактическое содержание водорода, поглощённого в результате коррозии при эксплуатации в реакторе, для оболочки из сплава Zircaloy-4 достигает 460 ppm [171]. Для оболочек из сплавов Э635М и Э110опт поглощение коррозионного водорода составляет соответственно 230 ppm и 120 ppm (указаны на линии TSSP, рисунок 6.1). Таким образом, условие  $C_H > C^{TSSP}$  по выпадению гидридов для проявления ЗГР в реакторе при 350 °C может с запасом выполняться во второй половине эксплуатации для сплава Zircaloy-4. Для сплава Э635М это условие также выполняется, но ближе к концу эксплуатации. А для сплава Э110опт выпадения гидридов происходить не будет из-за малого содержания поглощённого водорода вследствие низкой коррозии.

*Выполнение условия  $T < T_{ВТП}$*

$T_{ВТП}$  для каждого из сплавов определяется по температурной зависимости скорости роста трещины ЗГР в интервале её резкого снижения от максимального значения до прекращения растрескивания. Из температурных зависимостей  $V_{ЗГР}$  для необлучённых

оболочек твэлов из исследуемых сплавов (рисунок 4.1а,б) следует, что  $T_{ВТП}$  равна 320 °С для сплава Zircaloy-4, что согласуется с [17], 310 °С для Э635М и 265 °С для Э110опт. Чтобы спрогнозировать значения  $T_{ВТП}$  для оболочек из этих сплавов при облучении в реакторе необходимо знать уровень их прочностных свойств в состоянии после облучения. Такие данные приведены на рисунке 2.1.

Для облучённых образцов предел прочности каждого сплава определялся только при двух температурах - комнатной (20 или 25 °С) и повышенной (300, 350 или 380 °С). Уровень предела прочности облучённых оболочек для других температур (включая 350 °С для оболочек из Zircaloy-4 и Э110опт RХА) оценивали путем линейной интерполяции.

Из анализа рисунка 2.1 следует, что испытанные в данной работе оболочки из трёх сплавов в состояниях холодной деформации и снятия напряжений при повышенных температурах имеют близкий уровень прочности. С понижением температуры до комнатной уровень предела прочности оболочки из сплава Zircaloy-4 становится заметно выше, по сравнению с двумя другими сплавами, за счёт большего в 1,5-1,7 раза содержания кислорода в составе - атомы кислорода в твёрдом растворе при низких температурах, упрочняют сплав. Нейтронное облучение оболочки из сплава Zircaloy-4 увеличивает предел прочности материала при температуре 350 °С примерно в 1,27 раза. Уровень прочности необлучённых оболочек в состоянии RХА из сплавов Э635М и Э110опт существенно, в 1,5-2 раза (чем выше температура, тем больше различие) ниже прочности оболочек из этих сплавов в состоянии СW. Облучение оболочки RХА из сплава Э635М увеличивает её предел прочности по сравнению с необлучённым состоянием при температуре 350 °С в 2,5 раза. При этом значение предела прочности, по сравнению с пределом прочности для необлучённой оболочки в состоянии СW при этой температуре выше в 1,27 раза. Нейтронное облучение оболочки RХА из сплава Э110опт увеличивает её предел прочности по сравнению с необлучённым состоянием при 350 °С в 1,9 раза, что указывает на меньший эффект радиационного упрочнения сплавов системы Zr-Nb по сравнению со сплавами других систем. При этом, для оболочки RХА из сплава Э110опт за счёт облучения обеспечивается предел прочности такой же, как у оболочки Э110опт в состоянии СW без облучения. Следовательно, деформационное упрочнение оболочки из сплава Э110опт моделирует состояние упрочнения оболочки RХА из этого сплава после нейтронного облучения в реакторе. Этот позволяет предположить, что относительное преимущество в стойкости к ЗГР оболочек твэлов из сплава Э110опт по сравнению с оболочками твэлов из сплавов Э635М и Zircaloy-4 в состояниях после облучения будет выше, чем для испытанных в настоящей работе необлучённых оболочек из этих сплавов.

Опираясь на данные для предела прочности облучённых оболочек и влиянию облучения на увеличение  $T_{ВТП}$  на 40 °С, по сравнению с оболочками в необлучённом состоянии (как следует из выводов к главе 1), можно спрогнозировать, что  $T_{ВТП}$  для облучённой оболочки из сплава Zircaloy-4 составит 360 °С, что согласуется с оценкой, сделанной в [17]. Учитывая, что для облучённой оболочки RХА из сплава Э635М, по сравнению с необлучённой СW оболочкой, значение предела прочности при 350 °С выше в 1,27 раза, как и в случае с оболочками из сплава Zircaloy-4, можно ожидать, что значение  $T_{ВТП}$  для облучённой RХА оболочки Э635М тоже будет на 40 °С выше, чем у необлучённой СW оболочки, и составит 350 °С. Для облучённой оболочки из сплава Э110опт в состоянии RХА, исходя из данных рисунка 2.1, за  $T_{ВТП}$  следует принять значение 265 °С, как для необлучённой оболочки из этого сплава в состоянии СW.

Таким образом, можно заключить, что условие  $T < T_{ВТП}$  для сплава Zircaloy-4 будет выполняться при номинальной температуре эксплуатации оболочки в реакторе, однако скорость роста трещины ЗГР будет достаточно низкой. Для сплава Э635М данное условие, если и будет выполняться, то на пределе возможного, и рост трещины ЗГР будет происходить со скоростью, близкой к нулю. Для сплава Э110опт условие  $T < T_{ВТП}$  не выполняется, так как номинальная температура эксплуатации на 85 °С выше  $T_{ВТП}$ , поэтому оболочка имеет иммунитет к ЗГР.

#### *Выполнение условия $K_I > K_{II}$*

При рассмотрении выполнения данного условия с максимально консервативным подходом следует принять, что минимальные значения  $K_{II}$ , полученные в данной работе при температурах более низких, чем эксплуатационные, с поправкой на облучение для исследуемых сплавов будут действительны и при 350 °С.

С учётом такого подхода, значение  $K_{II}$  для оболочки из сплава Zircaloy-4 в необлучённом состоянии, равное 5 МПа·√м, снижается в результате облучения на 30 % (см. выводы по главе 1) до значения 3,5 МПа·√м. Для сплава Э635М принимаем, что значение  $K_{II}$  облучённой оболочки в состоянии RХА в результате эксплуатации будет, также, на 30 % меньше значения 6,7 МПа·√м, полученного для необлучённой оболочки в состоянии холодной деформации и снятия напряжений, то есть 4,7 МПа·√м. Для облучённой при температуре эксплуатации в реакторе оболочки RХА из сплава Э110опт примем значение  $K_{II}$  равное 8 МПа·√м, то есть на 30 % меньшее, чем 11,5 МПа·√м для необлучённой оболочки в состоянии холодной деформации и снятия напряжений.

В соответствии с технической документацией на твэл максимально допустимая глубина дефекта на наружной поверхности оболочки составляет 50 мкм. Наиболее

вероятным дефектом может быть продольная царапина, образованная от контакта оболочки с ячейкой дистанционирующей решётки при сборке пучка твэлов в ТВС. Для развития радиальной трещины от царапины такой глубины ( $a$ ) необходимы окружные растягивающие напряжения в твэле ( $\sigma$ ), которые обеспечат при эксплуатации в реакторе превышение прогнозных значений  $K_{I\Gamma}$  для облучённых оболочек из рассматриваемых сплавов. Для определения таких напряжений для каждого из сплавов используем соотношение [17,172]:

$$a = (K_{I\Gamma} / \sigma)^2 \times Q / 1,2 \pi \quad (6.1)$$

где  $Q$  – фактор формы дефекта, равный для царапины 1.

Вычисления показали, что для развития трещины в оболочке из сплава Zircaloy-4 необходимы напряжения, превышающие 255 МПа, в оболочке из сплава Э635М – 342 МПа, а в оболочке из сплава Э110опт – 583 МПа. Такие напряжения в твэлах при эксплуатации не допускаются, так как, например, для реакторов ВВЭР-1000 [173] существуют ограничения по окружным напряжениям в оболочках твэлов: напряжения не должны превышать пороговое значение 230 МПа с учётом нормативного коэффициента запаса 1,2. Указанное ограничение связано с необходимостью обеспечения для оболочек твэлов критерия прочности по коррозионному растрескиванию под напряжением в присутствии агрессивных продуктов деления топлива (КРН). Поэтому для оболочек из рассматриваемых трёх сплавов условие  $K_I > K_{I\Gamma}$  для ЗГР при нормальной эксплуатации в реакторе выполняться не будет. Для порогового напряжения 230 МПа и поверхностного дефекта глубиной 50 мкм в оболочке величина  $K_I$  равна  $3,15 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$ , что не превышает прогнозных значения  $K_{I\Gamma}$  для всех трёх рассматриваемых сплавов в облученном состоянии.

Для наглядности представленные выше данные для  $C_H$  и прогнозные оценки значений  $T_{ВТП}$  и  $K_{I\Gamma}$  для оболочек твэлов из трёх рассматриваемых сплавов циркония при эксплуатации в реакторе приводятся в таблице 6.1. Для каждого случая в таблице указано, выполняется ли соответствующее условие.

Из таблицы 6.1 следует, что для оболочек твэлов из рассмотренных сплавов, представляющих разные системы легирования циркония, при эксплуатации в реакторе возникновение разрушения по механизму ЗГР маловероятно, так как для этого не выполняются одновременно три основных условия. Для сплавов Zircaloy-4 и Э635М два условия выполняются - по концентрации водорода и верхнему температурному пределу, но не выполняется условие по коэффициенту интенсивности напряжений. Для сплава Э110опт не выполняются все три условия, причем с заметным запасом. Поэтому сплав Э110опт имеет наиболее высокую стойкостью к ЗГР, и его относительное преимущество над другими сплавами под действием облучения возрастает.

Таблица 6.1 – Оценка выполнения условий для возникновения ЗГР в оболочках ТВЭЛОВ из трёх сплавов циркония при температуре эксплуатации 350 °С

Условие для ЗГР	Zircaloy-4	Э635М	Э110опт
$C_H > C^{TSSP} = 200 \text{ ppm}$	$C_H = 460 \text{ ppm}$ Выполняется	$C_H = 230 \text{ ppm}$ Выполняется	$C_H = 120 \text{ ppm}$ Не выполняется
$T < T_{ВТП}$	$T_{ВТП} = 360 \text{ °С}$ Выполняется	$T_{ВТП} = 350 \text{ °С}$ Выполняется на пределе	$T_{ВТП} = 265 \text{ °С}$ Не выполняется
$K_I > K_{ИH}^*$	$K_{ИH} = 3,5 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ Не выполняется	$K_{ИH} = 4,7 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ Не выполняется	$K_{ИH} = 8 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$ Не выполняется

\* Комбинация максимально допустимых для оболочки величины окружных напряжений 230 МПа и глубины дефекта на наружной поверхности 50 мкм соответствует значению  $K_I = 3,15 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$  в его вершине.

## 6.2 Вероятность ЗГР оболочек ТВЭЛОВ в условиях сухого хранения

В начальный период сухого хранения отработавшего ядерного топлива температура оболочки ТВЭЛА может превышать температуру эксплуатации, но не должна быть больше 400 °С в соответствии с требованиями NRC (U.S. Nuclear Regulatory Commission) к сухому хранению топлива PWR по данным [17,174]. При такой температуре (которая выше температуры  $T_{ВТП}$  для рассматриваемых сплавов) все отработавшие оболочки будут иметь иммунитет к ЗГР. В этот период может произойти отжиг радиационных дефектов и как следствие разупрочнение оболочек [175]. Далее для большего консерватизма выполняемой оценки этот фактор учитывать не будем. С увеличением срока хранения температура сравнительно медленно уменьшается, как показано на рис. 6.2 (график зависимости температуры от времени при сухом хранении топлива PWR приведен из работы [17]), воспроизводящем условия охлаждения к температуре реализации ЗГР, применяемые в лабораторных испытаниях. В соответствии с концентрацией поглощённого при эксплуатации водорода  $C_H$  (таблица 6.1), гидриды в оболочке из сплава Zircaloy-4 будут присутствовать в начале сухого хранения при 400 °С (рисунок 6.1). В оболочке из сплава Э635М выпадение гидридов начнётся при температуре 365 °С после ~3 лет хранения, а в оболочке из сплава Э110опт при температуре 300 °С после ~10 лет хранения (рисунки 6.1 и 6.2). Таким образом, условие  $C_H > C^{TSSP}$  для ЗГР при сухом хранении (либо сразу, либо после 3 или 10 лет) для рассматриваемых сплавов будет выполняться. Для сплава Zircaloy-4

период иммунитета к ЗГР по температуре закончится через  $\sim 3,5$  года сухого хранения с достижением оболочкой температуры  $360\text{ }^{\circ}\text{C}$  (рисунок 6.2), соответствующей  $T_{\text{ВТП}}$  для этого сплава (таблица 6.1). Для сплава Э635М температурный иммунитет продлится  $\sim 4,5$  года хранения, а для сплава Э110опт - 18 лет, пока температуры оболочек не достигнут соответствующих значений  $T_{\text{ВТП}}$ , равных  $350\text{ }^{\circ}\text{C}$  и  $265\text{ }^{\circ}\text{C}$  (рисунок 6.2, таблица 6.1). В принципе периоды иммунитета для сплавов могут быть больше из-за разупрочнения оболочек на начальной стадии сухого хранения, и снижения по этой причине температур  $T_{\text{ВТП}}$ .

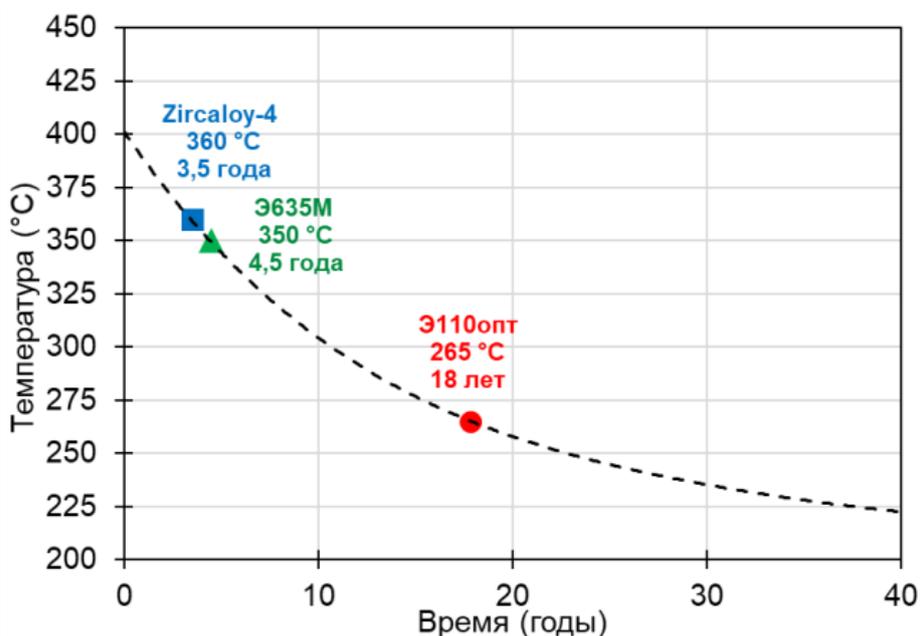


Рисунок 6.2 - Периоды иммунитета к ЗГР для оболочек твэлов из рассматриваемых сплавов циркония при сухом хранении в зависимости от значения  $T_{\text{ВТП}}$

В качестве среды хранения используется инертный газ, давление которого ниже внутреннего давления в твэле, создаваемого исходным газом-наполнителем и газообразными продуктами деления топлива, что приводит к возникновению растягивающих окружных напряжений в оболочке. Для твэлов с большим выгоранием дополнительный вклад в эти напряжения вносит контакт топлива с оболочкой. Максимальные напряжения возникают на начальном этапе хранения и снижаются по мере остывания оболочки. В условиях хранения отработавшего топлива PWR требования NRC ограничивают максимальные окружные напряжения величиной  $90\text{ МПа}$  [17,174]. Для инициирования радиальной трещины ЗГР при таком напряжении и значениях  $K_{\text{Ic}}$ , указанных в таблице 6.1, критический размер ( $a$ ) первичного поверхностного дефекта,

оценённый по формуле (6.1), для оболочки из сплава Zircaloy-4 должен составлять 0,4 мм в глубину при номинальной толщине оболочки 0,57 мм или 0,7 её толщины (и даже больше, если учитывать уменьшение толщины оболочки за счёт коррозии). Для оболочки из сплава Э635М критический размер первичного дефекта должен быть 0,72 мм или в 1,26 раза больше толщины, а для оболочки из сплава Э110опт – 2,08 мм или в 3,65 раза больше толщины. С уменьшением напряжений в процессе хранения размер первичного дефекта для инициирования ЗГР увеличивается.

Первичный дефект глубиной больше половины толщины оболочки может легко раскрыться до сквозной трещины в начальный период хранения, приведя к утечке газа-наполнителя с продуктами деления. Если бы сквозные трещины появились в начальный период хранения, их бы своевременно обнаружили при наблюдениях за отработавшим топливом, хранившимся несколько лет. Однако сквозных трещин не появилось в отработавшем топливе после 15 лет [176] и 20 лет [177] сухого хранения, свидетельствуя, что комбинации первичных дефектов и внутреннего давления в твэле было недостаточно, чтобы вызвать ЗГР. Таким образом, проведённый анализ с использованием прогнозных значений  $K_{II}$  для облучённых оболочек из трёх сплавов циркония, подтверждает заключения (сделанные для оболочек из сплава Zircaloy-4) [17,178], что первичные дефекты на отработавших в реакторе оболочках твэлов должны быть слишком большими, чтобы развиться до сквозного разрушения в ходе распространения трещины ЗГР при сухом хранении, если окружные напряжения от внутреннего давления в твэле ограничены значением 90 МПа. Более того, на отработавших в реакторе оболочках твэлов из сплавов Э635М и Э110опт размеры первичных дефектов для инициирования ЗГР при сухом хранении должны превышать толщину оболочки, что, очевидно, невозможно, поскольку твэлы со сквозными первичными дефектами в оболочке не допускаются для сухого хранения.

Для подтверждения и уточнения сделанной в настоящей работе прогнозной оценки необходимо провести испытания на ЗГР с определением его основных параметров и их температурных зависимостей на облучённых оболочках твэлов из сплавов циркония с различными легированием, структурой и прочностью. Объём таких экспериментов, учитывая трудоёмкость работы с облучённым материалом, может быть оптимизирован на основе выполненного в рамках настоящего исследования анализа.

### 6.3 Выводы по главе 6

1. По экспериментальным данным для необлучённого состояния (рисунок 4.1) определены прогнозные значения  $K_{IH}$  и  $T_{ВТП}$  для облучённых оболочек твэлов из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт. Для прогноза вероятности ЗГР оболочек в реакторах типа ВВЭР/PWR при температуре 350 °С рассмотрено одновременное выполнение трёх основных условий: по концентрации водорода ( $C_H > C^{TSSP}$ ), по температуре иммунитета к ЗГР ( $T < T_{ВТП}$ ) и по коэффициенту интенсивности напряжений в вершине острого дефекта ( $K_I > K_{IH}$ ). Установлено, что выполнения одновременно трех указанных условий не происходит. Для сплавов Zircaloy-4 и Э635М первые два выполняются, третье – нет, а для сплава Э110опт не выполняются все три условия. невыполнение условия  $K_I > K_{IH}$  для всех сплавов обусловлено ограничением на величину окружных напряжений в твэле (230 МПа), что не позволяет инициировать ЗГР от допустимого дефекта глубиной в 50 мкм на наружной поверхности оболочки. Стойкость к ЗГР у сплава Э110опт наиболее высокая, при этом относительное преимущество его над другими сплавами под облучением возрастает.

2. В условиях сухого хранения на начальном этапе при 400 °С оболочки всех сплавов имеют иммунитет к ЗГР. При охлаждении до температур  $T_{ВТП}$  и ниже, даже при максимально допустимых окружных напряжениях в твэле величиной 90 МПа с учётом прогнозных значений по  $K_{IH}$  первичные дефекты на отработавших оболочках должны быть слишком большими, чтобы развиться до сквозной трещины по механизму ЗГР. Для сплава Zircaloy-4 минимальный размер первичного дефекта составляет 0,7 толщины оболочки. Такой дефект мог бы легко раскрыться в начальный период хранения, однако, за 20 лет наблюдений разгерметизации при сухом хранении не было обнаружено. На отработавших твэлах из сплавов Э635М и Э110опт размеры первичных дефектов для ЗГР должны даже превышать толщину оболочки, что не допускается требованиями к условиям сухого хранения.

Таким образом, при нормальной эксплуатации в реакторах типа ВВЭР / PWR и в условиях сухого хранения отработавших ТВС, с соблюдением допустимых требований по напряжениям в твэле, проявление ЗГР в циркониевых оболочках маловероятно, что подтверждается отсутствием таких случаев для указанных реакторов за более чем 60-ти летний период их эксплуатации. Для более точной прогнозной оценки следует выполнить оптимально необходимый объём экспериментальных исследований характеристик стойкости к ЗГР облучённых оболочек твэлов из сплавов циркония разного легирующего состава, структурно-фазового состояния и прочности.

## Основные выводы

1. Разработан и применён для оболочек твэлов из сплавов циркония метод испытаний на ЗГР для определения порогового коэффициента интенсивности напряжений ( $K_{II}$ ) при зафиксированном раскрытии трещины в образце и самопроизвольном снижении нагрузки. Метод позволяет в одном эксперименте определять также скорость ЗГР и её зависимость от  $K_I$  в широком диапазоне значений.

2. На необлучённых оболочках в сопоставимых состояниях холодной деформации и снятия напряжений из сплавов Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, представляющих три системы легирования циркония, определены  $K_{II}$ , скорость стабильного роста трещины ( $V_{ЗГР}$ ) и их температурные зависимости, имеющие для сплавов подобный вид, но различающиеся количественно. Максимальная температура ( $T_{max}$ ), ниже которой  $V_{ЗГР}$  подчиняется соотношению Аррениуса, а  $K_{II}$  слабо зависит от температуры при минимальных значениях 5; 6,7 и 11,5 МПа $\cdot\sqrt{м}$  соответственно для Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, составляет для них значения 292, 280 и 231 °С. Энергии активации ЗГР равны 57, 49 и 43 кДж/моль, характеризуя снижение температурной зависимости  $V_{ЗГР}$  сплавов в приведенной последовательности. Выше  $T_{max}$  скорость ЗГР резко снижается с сопутствующим увеличением  $K_{II}$ . Верхние температурные пределы, выше которых ЗГР не происходит, составляют значения 320, 310 и 265 °С, соответственно для Zircaloy-4, Э635М и Э110опт.

3. Показано, что на поверхности изломов трещин ЗГР в световом микроскопе наблюдаются регулярно расположенные бороздки в виде вязких перемычек между хрупкими разрушениями гидридов критического размера, со следующими особенностями для сплавов:

- в Э110опт бороздки отчётливо видны, вследствие наибольшего расстояния между ними;

- в Э635М расстояние между бороздками в 2,6 раза меньше, но они наблюдаются достаточно хорошо, особенно, в испытаниях на  $K_{II}$ ;

- в Zircaloy-4 бороздки практически не видны из-за малого расстояния между ними.

Чёткий бороздчатый рельеф трещин с наибольшим расстоянием между бороздками является индикатором высокой стойкости сплава к разрушению по механизму ЗГР.

4. Результаты испытаний с определением основных параметров ЗГР ( $K_{II}$  и  $V_{ЗГР}$ ) и их температурных зависимостей, включая анализ бороздок в рельефе поверхности гидридных трещин, свидетельствуют, что исследованные сплавы по возрастанию стойкости к ЗГР располагаются в ряд Zircaloy-4, Э635М и Э110опт, с очевидным превосходством Э110опт, относительное преимущество которого возрастает в результате нейтронного облучения.

5. Определены прогнозные значения ключевых параметров ЗГР для оболочек твэлов из Zircaloy-4, Э635М и Э110опт в состоянии облучения. Для прогноза вероятности ЗГР указанных оболочек при эксплуатации в реакторе рассмотрено одновременное выполнение трёх основных условий: по концентрации водорода для образования гидридов, по температуре иммунитета к ЗГР и по коэффициенту интенсивности напряжений в вершине острого дефекта. Показано, что одновременного выполнения данных условий не происходит. Для возникновения ЗГР в отработавших твэлах при сухом хранении первичные дефекты в оболочках должны быть слишком большими: для Zircaloy-4 - 0,7 толщины оболочки, для Э635М и Э110опт – превышать толщину оболочки. Таким образом, при нормальной эксплуатации в реакторах типа ВВЭР / PWR, а также в условиях последующего сухого хранения, с соблюдением в обоих случаях допустимых требований по напряжениям в твэле, проявление ЗГР в циркониевых оболочках не прогнозируется.

### Список использованных источников

1. Займовский А.С., Никулина А.В., Решетников Н.Г. «Циркониевые сплавы в ядерной энергетике» // 2-е изд., перераб. и доп. – М.: Энергоатомиздат, 1994 г. - 256 с.
2. Coleman, C. E. “Cracking of Hydride-Forming Metals and Alloys,” in *Comprehensive Structural Integrity*, ed. I. Milne, R. O. Ritchie, and B. Karihaloo (Amsterdam, The Netherlands: Elsevier: 2003), 103–161.
3. Puls, M.P. *The Effect of Hydrogen and Hydrides on the Integrity of Zirconium Alloy Components: Delayed Hydride Cracking* (London: Springer Science & Business Media, 2012).
4. Perryman, E. C. W. “Pickering Pressure Tube Cracking Experience,” *Nuclear Energy* 17 (1978): 95–105.
5. Field, G. J., Dunn, J. T. and Cheadle, B. A. “Analysis of the Pressure Tube Failure at Pickering NGS ‘A’ Unit 2,” *Canadian Metallurgical Quarterly* 24 (1985): 181–188.
6. Platonov, P.A., Ryazantseva, A.V., Saenko, G.P., Knizhnikov, Y.N. and Viktorov, V.F. “The Study of Cause of Cracking in Zirconium Alloy Channel Tubes” (paper presentation, ASTM Zirconium in the Nuclear Industry—Eighth International Symposium, San Diego, CA, June 19–23, 1988).
7. Платонов П.А., Рязанцев Е.П. Обзор программ исследования технологических каналов и каналов СУЗ реакторов РБМК // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы*, 1990. Вып. 2 (36). С. 3-6.
8. Jonsson, A., Hallstadius, L., Grapengiesser, B. and Lysell, G. “Failure of a Barrier Rod in Oskarshamn-3” (paper presentation, International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Avignon, France, April 21–24, 1991).
9. Schrire, D., Grapengiesser, B., Lundholm, I., Lysell, G., Frenning, G., Ronnberg, G. and Jonsson, A. “Secondary Defect Behaviour in ABB BWR Fuel” (paper presentation, International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, West Palm Beach, FL, April 17–21, 1994).
10. Armijo, J. S. “Performance of Failed BWR Fuel” (paper presentation, International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, West Palm Beach, FL, April 17–21, 1994).
11. Lysell, G. and Grigoriev, V. “Characteristics of in Failed BWR Fuel Rods,” in *Ninth International Symposium on Environment Degradation of Materials in Nuclear Power Systems—Water Reactors*, ed. S. Bruemmer, P. Ford, and G. Was (Hoboken, NJ: Wiley, 1999), 1.169–1.175.
12. Edsinger, K., Davies, J. H. and Adamson, R. B. “Degraded Fuel Cladding Fractography and Fracture Behavior,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: 12th International Symposium*, ed.

- G. P. Sabol and G. D. Moan (West Conshohocken, PA: ASTM International, 2000), 316–339, <https://doi.org/10.1520/STP14306S>
13. Edsinger, K. “A Review of Fuel Degradation in BWRs” (paper presentation, International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park City, UT, April 10–13, 2000).
  14. Shimada, S., Eton, E., Hayashi, H. and Tukuta, Y. “A Metallographic and Fractographic Study of Outside-In Cracking Caused by Power Ramp Tests,” *Journal of Nuclear Materials* 327 (2004): 97–113.
  15. Chung, H. M. “Understanding Hydride and Hydride-Related Processes in High-Burnup Cladding in Spent-Fuel-Storage and Accident Situations” (paper presentation, International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, FL, September 19–22, 2004).
  16. Kim, Y. S. “Delayed Hydride Cracking of Spent Fuel Rods in Dry Storage,” *Journal of Nuclear Materials* 378 (2008): 30–34.
  17. Coleman, C. E., Markelov, V. A., Roth, M., Makarevicius, V., He, Z., Chakravartty, J. K., Alvarez-Holston, A.-M., Ali, L., Ramanathan, L. and Inozemtsev, V. “Is Spent Nuclear Fuel Immune from Delayed Hydride Cracking during Dry Storage? An IAEA Coordinated Research Project,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: 18th International Symposium*, ed. R. J. Comstock and A. T. Motta (West Conshohocken, PA: ASTM International, 2018), 1224–1251, <https://doi.org/10.1520/STP159720160048>
  18. Cheadle, B. A., Coleman, C. E. and Ambler, J. F. R. “Prevention of Delayed Hydride Cracking in Zirconium Alloys,” in *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventh International Symposium*, ed. R. Adamson and L. S. Van Swam (West Conshohocken, PA: ASTM International, 1987), 224–240, <https://doi.org/10.1520/STP28122S>
  19. Sagat, S. and Puls, M.P. “Temperature Limit for Delayed Hydride Cracking in Zr-2.5Nb Alloys” (paper presentation, International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Prague, Czech Republic, August 17–22, 2003).
  20. Levi M.R. and Puls M.P. “DHC Behaviour of Irradiated Zr-2.5Nb Pressure Tubes up to 365°C” (paper presentation, International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Beijing, China, August 7–12, 2005).
  21. Nikulina A.V., Toffolon-Masclet C., Coleman C.E. “Alloy Development” in *The Metallurgy of Zirconium, Volume 1*, ed. C.E. Coleman (Vienna, The Austria: International Atomic Energy Agency: 2022), 11-122.
  22. Coleman, C. E., Grigoriev, V., Inozemtsev, V., Markelov, V., Roth, M., Makarevicius, V., Kim, Y. S., Ali, K. L., Chakravartty, J. K., Mizrahi, R., and Lalgudi, R., “The Effect of Microstructure on Delayed Hydride Cracking Behavior of Zircaloy-4 Fuel Cladding—an IAEA

- Coordinated Research Programme,” J. ASTM International, Vol. 7, No. 5, 2011, pp. 1–20, <http://dx.doi.org/10.1520/JAI103008>
23. Sakamoto, K., Nakatsuka, M., and Higuchi, T., “Simulation of Cracking during Outside-in Type Failure of High Burn-up Fuel Cladding Tubes” (paper presentation, International Water Reactor Fuel Performance Meeting, Seoul, Korea, October 19–23, 2008, Paper 8009).
  24. Efsing, P. and Pettersson, K. “The Influence of Temperature and Yield Strength on Delayed Hydride Cracking in Hydrided Zircaloy-2” in Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh Intern. Symp., ASTM STP 1295, 1996. P. 394 – 404.
  25. Efsing P. and Petterson, K. “Delayed Hydride Cracking in Irradiated Zircaloy Cladding” in Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, 2000. P. 340-355.
  26. Kubo, T., Muta, H., Yamanaka, S., Uno, M., and Ogata, K., “ In Situ Scanning Electron Microscope Observation and Finite Element Method Analysis of Delayed Hydride Cracking Propagation in Zircaloy-2 Fuel Cladding Tubes” in Zirconium in the Nuclear Industry: Sixteenth International Symposium, ASTM STP 1529, 2011. P. 433-465.
  27. Асмолов В.Г. О выборе приоритетов, оптимальной стратегии и тактики инновационного развития крупномасштабной ядерной энергетической системы России // Росэнергоатом (ежемесячный журнал атомной энергетики России), № 5 май 2008 г., С. 16-21.
  28. Асмолов В.Г. О создании крупномасштабной ядерной энергетической системы России // В кн.: Развитие атомной энергетики России и Украины – фактор устойчивого межгосударственного развития: материалы совместного совещания - семинара Российской академии наук и Национальной академии наук Украины: 21-23 октября 2008 года, г. Электросталь. - М.: Наука, 2009. С. 22-31.
  29. All about nuclear energy / Nuclear reactors // AREVA – Communications Department – April 2008. P. 43-70.
  30. Займовский А.С., Никулина А.В., Решетников Н.Г. // Циркониевые сплавы в атомной энергетике, М.: Энергоиздат, 1981, 232 с.
  31. Маркелов В.А. Совершенствование состава и структуры сплавов циркония в обеспечение работоспособности твэлов, ТВС и труб давления активных зон водоохлаждаемых реакторов с увеличенным ресурсом и выгоранием топлива // Диссертация доктора технических наук, М., 2010, 278 с.
  32. Никулина А.В. Цирконийниобиевые сплавы для элементов активных зон реакторов с водой под давлением // Материаловедение и термическая обработка металлов. 2003. №8. С. 7-12.

33. Никулина А.В. Циркониевые сплавы в атомной энергетике // Материаловедение и термическая обработка металлов. 2004. №11. С. 8-12.
34. Маркелов В.А., Новиков В.В., Перегуд М.М., Коньков В.Ф., Шишов В.Н., Балашов А.А. Оптимизация сплава Э110 для оболочек твэлов ВВЭР-1000. Сборник тезисов 5-й международной научно-технической конференции Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР, 29 мая-1 июня 2007, Подольск, Россия, 72.
35. Mardon J.P., Charquet D., Senevat J. Development of New Zirconium Alloys for PWR Fuel Rod Cladding // Proc. of the 1994 International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, West Palm Beach, Florida, April 17-24. 1994. P. 643-649.
36. Mardon J.P., Garner G., Beslu P., Charquet D., Senevat J. Update on the Development of Advanced Zirconium Alloys for PWR Fuel Rod Claddings // Proc. of the 1997 International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, Oregon, USA, March 2-6 .1997. P. 405-413.
37. Nikulina A.V., Markelov V.A., Peregud M.M., Bibilashvili Y.K., Kotrekhov V.A., Lositski A.F., Kuzmenko N.V., Shevnin Y.P., Shamardin V.K., Kobylansky G.P., Novoselov A.E. “Zirconium Alloy E635 as a Material for Fuel Rod Cladding and Other Components of VVER and RBMK Cores” // Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295, 1996. P. 785-804.
38. Shishov V.N., Peregud M.M., Nikulina A.V., Kon'kov V.F., Novikov V.V., Markelov V.A., Khokhunova T.N., Kobylansky G.P., Novoselov A.E., Ostrovsky Z.E., Obukhov A.V. Structure-Phase State, Corrosion and Irradiation Properties of Zr-Nb-Fe-Sn System Alloys // Zirconium in the Nuclear Industry: 15th Int. Symp. ASTM STP 1505. 2009. P. 724-743 (Journal of ASTM International, Vol. 5, No. 3, Paper ID JAI101127).
39. Sabol, G.P., Schoenberger, G. and Balfour, M.G. Improved PWR Fuel Cladding // Proc. IAEA Technical Committee Meeting on Materials for Advanced Water Cooled Reactors, International Atomic Energy Agency, Vienna, IAEA-TECDOC-665, 1992, P.122.
40. Sabol, G.P. ZIRLOTM – An Alloy Development Success // Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467, 2006, P. 3-24 (Journal of ASTM international, February 2005, Vol.2, No.2, Paper ID JAI 12942).
41. Motta A.T., Couet A., Comstock R.J. Corrosion of zirconium alloys used for nuclear fuel cladding // Annual Review of Materials Research. – 2015. – Т. 45. – С. 311-343.
42. Шмаков А.А., Калинин Б.А., Ананьин А.А., Пименов Ю.В., Тимошин С.Н., Новиков В.В., Маркелов В.А. Предельная растворимость водорода в сплавах циркония // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы. 2006. Вып. 1(66). С. 366-370.

43. Плясов А.А., Новиков В.В., Девятко Ю.Н. Растворимость водорода в циркониевых сплавах // Ядерная физика и инжиниринг. – 2019. – Т. 10. – №. 2. – С. 113-125.
44. Plyasov A.A., Fedotov A.V., Saburov N.S., Mikheev E.N., Tenishev A.V., Isaenkova M.G., Mikhailchik V.V. Hydrogen Solubility in Zirconium Alloys E110opt and E635 // Physics of Atomic Nuclei, 2022, Vol. 85, No. 11, pp. 1808–1815.
45. Motta A.T., Capolungo L., Chen L.Q., Cinbiz M.N., Daymond M.R., Koss D.A., Lacroix E., Pastore G., Simon P.A., Tonks M.A., Wirth B.D., Zikry, M. A. Hydrogen in zirconium alloys: A review // Journal of Nuclear Materials. – 2019. – Т. 518. – С. 440-460.
46. Cox B., Rudling P. Hydriding Mechanisms and Impact on Fuel Performance // ZIRAT, Advanced Nuclear Technology, Uppsala, Sweden. – 2000.
47. McMinn A., Darby E.C., Schofield J.S. The terminal solid solubility of hydrogen in zirconium alloys // Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, 2000, P. 173–195.
48. Lacroix E., Motta A.T., Almer J.D. Experimental determination of zirconium hydride precipitation and dissolution in zirconium alloy // Journal of Nuclear Materials. – 2018. – Т. 509. – С. 162-167.
49. Puls M.P. The effects of misfit and external stresses on terminal solid solubility in hydride-forming metals // Perspectives in Hydrogen in Metals. – Pergamon, 1986. – С. 461-468.
50. Kammenzind B.G., Franklin D.G., Peters H.R., Duffin, W.J. Hydrogen pickup and redistribution in alpha-annealed Zircaloy-4 // Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP-1295, 1996, C. 338-369.
51. Kammenzind B. F., Berquist B. M., Bajaj R., Kreyns P. H., Franklin D. G. The Long-Range Migration of Hydrogen Through Zircaloy in Response to Tensile and Compressive Stress Gradients // Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP-1354, 2000, C. 196-233.
52. Courty O., Motta A.T., Hales J.D. Modeling and simulation of hydrogen behavior in Zircaloy-4 fuel cladding // Journal of Nuclear Materials. – 2014. – Т. 452. – №. 1-3. – С. 311-320.
53. Courty O.F., Motta A.T., Piotrowski C.J., Almer J.D. Hydride precipitation kinetics in Zircaloy-4 studied using synchrotron X-ray diffraction // Journal of Nuclear Materials. – 2015. – Т. 461. – С. 180-185.
54. Stafford D.S. Multidimensional simulations of hydrides during fuel rod lifecycle // Journal of Nuclear Materials. – 2015. – Т. 466. – С. 362-372.
55. Lanzani L., Ruch M. Comments on the stability of zirconium hydride phases in Zircaloy // Journal of Nuclear Materials. – 2004. – Т. 324. – №. 2-3. – С. 165-176.

56. Root J.H., Small W.M., Khatamian D., Woo O.T. Kinetics of the  $\delta$  to  $\gamma$  zirconium hydride transformation in Zr-2.5 Nb // *Acta Materialia*. – 2003. – T. 51. – №. 7. – C. 2041-2053.
57. Hanlon S.M., Persaud S.Y., Long F., Korinek A., Daymond M.R. A solution to FIB induced artefact hydrides in Zr alloys // *Journal of Nuclear Materials*. – 2019. – T. 515. – C. 122-134.
58. Christensen M., Wolf W., Freeman C., Wimmer E., Adamson R.B., Hallstadius, L., Mader E. V. Effect of Hydrogen on Dimensional Changes of Zirconium and the Influence of Alloying Elements: First-Principles and Classical Simulations of Point Defects, Dislocation Loops, and Hydrides // *Zirconium in the Nuclear Industry: 17th International Symposium*, ed. B. Comstock and P. Barberis (West Conshohocken, PA: ASTM International, 2015), 55–92, <https://doi.org/10.1520/STP154320120170>
59. Maimaitiyili T., Bjerken C., Steuwer A., Wang Z., Daniels J., Andrieux J., Zanellato O. In situ observation of  $\gamma$ -ZrH formation by X-ray diffraction // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2017. – T. 695. – C. 3124-3130.
60. McRae G.A., Coleman C.E. Precipitates in metals that dissolve on cooling and form on heating: An example with hydrogen in alpha-zirconium // *Journal of Nuclear Materials*. – 2018. – T. 499. – C. 622-640.
61. Bailey J.E. Electron microscope observations on the precipitation of zirconium hydride in zirconium // *Acta metallurgica*. – 1963. – T. 11. – №. 4. – C. 267-280.
62. Marshall R.P., Louthan Jr M.R. Tensile properties of Zircaloy with oriented hydrides // *Transactions of the ASM*. – 1963. – T. 56, - C. 693-700.
63. Beevers C.J., Barraclough K.G. Some observations on the deformation characteristics of bulk polycrystalline zirconium hydrides: Part 2 The deformation of  $\epsilon$ -hydrides // *Journal of Materials Science*. – 1969. – T. 4. – C. 802-808.
64. Barraclough K.G., Beevers C.J. Some observations on the deformation characteristics of bulk polycrystalline zirconium hydrides: Part 1 The deformation and fracture of hydrides based on the  $\delta$ -phase // *Journal of Materials Science*. – 1969. – T. 4. – C. 518-525.
65. Xu J., Shi S.Q. Investigation of mechanical properties of  $\epsilon$ -zirconium hydride using micro-and nano-indentation techniques // *Journal of nuclear materials*. – 2004. – T. 327. – №. 2-3. – C. 165-170.
66. Simpson L.A. Criteria for fracture initiation at hydrides in zirconium-2.5 pct niobium alloy // *Metallurgical Transactions A*. – 1981. – T. 12. – C. 2113-2124.
67. Puls M.P. The influence of hydride size and matrix strength on fracture initiation at hydrides in zirconium alloys // *Metallurgical Transactions A*. – 1988. – T. 19. – C. 1507-1522.
68. Puls M.P. Fracture initiation at hydrides in zirconium // *Metallurgical transactions A*. – 1991. – T. 22. – C. 2327-2337.

69. Lanin A.G., Zalivin I.M., Turchin V.N., Bojko, E.B. Mechanical properties of zirconium, titanium and yttrium hydride alloys // *Problemy Prochnosti*. – 1984. – С. 83-88.
70. Puls M. P., Shi S. Q., Rabier J. Experimental studies of mechanical properties of solid zirconium hydrides // *Journal of nuclear materials*. – 2005. – Т. 336. – №. 1. – С. 73-80.
71. Leitch B.W., Puls M.P. Finite element calculations of the accommodation energy of a misfitting precipitate in an elastic-plastic matrix // *Metallurgical Transactions A*. – 1992. – Т. 23. – С. 797-806.
72. Choubey R., Puls M.P. Crack initiation at long radial hydrides in Zr-2.5 Nb pressure tube material at elevated temperatures // *Metallurgical and Materials Transactions A*. – 1994. – Т. 25. – С. 993-1004.
73. Kerr M., Daymond M.R., Holt R.A., Almer J.D. Strain evolution of zirconium hydride embedded in a Zircaloy-2 matrix // *Journal of Nuclear Materials*. – 2008. – Т. 380. – №. 1-3. – С. 70-75.
74. Shi S.Q., Puls M.P. Fracture strength of hydride precipitates in Zr–2.5Nb alloys // *Journal of Nuclear Materials*. – 1999. – Т. 275. – №. 3. – С. 312-317.
75. Kubo T., Kobayashi Y., Uchikoshi H. Determination of fracture strength of  $\delta$ -zirconium hydrides embedded in zirconium matrix at high temperatures // *Journal of nuclear materials*. – 2013. – Т. 435. – №. 1-3. – С. 222-230.
76. Sakamoto K., Nakatsuka M. Stress reorientation of hydrides in recrystallized Zircaloy-2 sheet // *Journal of nuclear science and technology*. – 2006. – Т. 43. – №. 9. – С. 1136-1141.
77. Bell L. G., Duncan R. G. Hydride orientation in Zr-2.5% Nb; how it is affected by stress, temperature and heat treatment. – Atomic Energy of Canada Ltd., 1975. – №. AECL--5110
78. Кулаков Г.В., Ватулин А.В., Коновалов Ю.В., Косауров А.А., Перегуд М.М., Коротченко Е.А., Шишин В.Ю., Шельдяков А.А. Анализ влияния напряженно-деформированного состояния облученных оболочек твэлов из циркониевых сплавов на ориентацию гидридов // *Атомная энергия*. – 2017. – Т. 122. – №. 2. – С. 73-77
79. Lee J.M., Kim H.A., Kook D.H., Kim Y.S. A study on the effects of hydrogen content and peak temperature on threshold stress for hydride reorientation in Zircaloy-4 cladding // *Journal of Nuclear Materials*. – 2018. – Т. 509. – С. 285-294.
80. Kim Y.J., Kook D.H., Kim T.H., Kim J.S. Stress and temperature-dependent hydride reorientation of Zircaloy-4 cladding and its effect on the ductility degradation // *Journal of Nuclear Science and Technology*. – 2015. – Т. 52. – №. 5. – С. 717-727.
81. Valance S., Bertsch J. Hydrides reorientation investigation of high burn-up PWR fuel cladding // *Journal of Nuclear Materials*. – 2015. – Т. 464. – С. 371-381.

82. Li J., Wang Z., Wu H., Chen G. Microstructural and crystallographic analysis of hydride reorientation in a zirconium alloy cladding tube // *Journal of Nuclear Materials*. – 2020. – Т. 537. – С. 152232.
83. Tenckhoff E. Review of deformation mechanisms, texture, and mechanical anisotropy in zirconium and zirconium base alloys // *Journal of ASTM International*. – 2005. – Т. 2. – №. 4. – С. 1-26.
84. Lee H., Kim K.M., Kim J.S., Kim Y.S. Effects of hydride precipitation on the mechanical property of cold worked zirconium alloys in fully recrystallized condition // *Nuclear Engineering and Technology*. – 2020. – Т. 52. – №. 2. – С. 352-359.
85. Raju I.S., Newman Jr J.C. Improved Stress-Intensity Factors for Semi-Elliptical Surface Cracks in Finite-Thickness Plates // *NASA TM X-72825*. - 1977.
86. Raju I.S., Newman Jr J.C. Stress-intensity factors for a wide range of semi-elliptical surface cracks in finite-thickness plates // *Engineering fracture mechanics*. – 1979. – Т. 11. – №. 4. – С. 817-829.
87. Raju I.S., Newman Jr J.C. Stress-Intensity Factors for Internal Surface Cracks in Cylindrical Pressure Vessels // *Journal of Pressure Vessel Technology*. – 1980. - Т. 102. -С. 342-346.
88. Raju I.S., Newman Jr J.C. Stress-Intensity Factors for Internal and External Surface Cracks in Cylindrical Vessels // *Journal of Pressure Vessel Technology*. – 1982. - Т. 104.- С. 293-298.
89. Dutton R., Nuttall K., Puls M.P., Simpson L.A. Mechanisms of hydrogen induced delayed cracking in hydride forming materials // *Metallurgical Transactions A*. – 1977. – Т. 8. – №. 10. – С. 1553-1562.
90. Gou Y., Li Y., Liu Y., Chen H., Ying S. Evaluation of a delayed hydride cracking in Zr-2.5 Nb CANDU and RBMK pressure tubes // *Materials & Design*. – 2009. – Т. 30. – №. 4. – С. 1231-1235.
91. Shek G.K., Seahra H., Eadie R.L. Metallographic and fractographic observations of hydrides during delayed hydride cracking in Zr-2.5% Nb alloy // *Materials characterization*. – 1998. – Т. 40. – №. 1. – С. 15-25.
92. Nuttall K., Rogowski A.J. Some fractographic aspects of hydrogen-induced delayed cracking in Zr-2.5 wt% Nb alloys // *Journal of Nuclear Materials*. – 1979. – Т. 80. – №. 2. – С. 279-290.
93. Маркелов В.А., Котов П.В, Желтковская Т.Н. Температурная зависимость скорости замедленного гидридного растрескивания сплава Zr-2,5%Nb // *Материаловедение*, 2010. №1. С. 52-59.
94. Херцберг Р. В. Деформация и механика разрушения конструкционных материалов: Пер. с англ. – *Металлургия*, 1989.

95. Shi S.Q., Puls M.P. Criteria for fracture initiation at hydrides in zirconium alloys I. Sharp crack tip // *Journal of Nuclear Materials*. – 1994. – Т. 208. – №. 3. – С. 232-242.
96. Shi S.Q., Puls M.P. Dependence of the threshold stress intensity factor on hydrogen concentration during delayed hydride cracking in zirconium alloys // *Journal of nuclear materials*. – 1995. – Т. 218. – №. 1. – С. 30-36.
97. Smith E. The fracture of hydrided material during delayed hydride cracking (DHC) crack growth // *International journal of pressure vessels and piping*. – 1995. – Т. 61. – №. 1. – С. 1-7.
98. Wäppling D., Massih A.R., Stähle P. A model for hydride-induced embrittlement in zirconium-based alloys // *Journal of nuclear materials*. – 1997. – Т. 249. – №. 2-3. – С. 231-238.
99. Kim Y.S., Matvienko Y.G., Cheong Y.M., Kim S.S., Kwon S.C. A model of the threshold stress intensity factor,  $K_{IH}$ , for delayed hydride cracking of Zr-2.5 Nb alloy // *Journal of nuclear materials*. – 2000. – Т. 278. – №. 2-3. – С. 251-257.
100. McRae G.A., Coleman C.E., Leitch B.W. The first step for delayed hydride cracking in zirconium alloys // *Journal of Nuclear Materials*. – 2010. – Т. 396. – №. 1. – С. 130-143.
101. Dutton R., Nuttall K., Puls M.P., Simpson L.A. Mechanisms of hydrogen induced delayed cracking in hydride forming materials // *Metallurgical Transactions A*. – 1977. – Т. 8. – С. 1553-1562.
102. Puls M.P., Simpson L.A., Dutton R. Fracture problems and solutions in the energy industry // Pergamon Press, Oxford. – 1982. – С. 13-25.
103. Kim Y. S., Kim S. S., Ahn S. B., Cheong Y. M, Abstract booklet for 14th Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry // ASTM, Stockholm, Sweden. – 2004. – Т. 81.
104. Kim Y.S., Ahn S.B., Cheong Y.M. Precipitation of crack tip hydrides in zirconium alloys // *Journal of alloys and compounds*. – 2007. – Т. 429. – №. 1-2. – С. 221-226.
105. Kim Y.S. Temperature dependency of delayed hydride cracking velocity in Zr-2.5 Nb tubes // *Materials Science and Engineering: A*. – 2007. – Т. 468. – С. 281-287.
106. Маркелов В.А. Замедленное гидридное растрескивание сплавов циркония: условия проявления и основные закономерности // *Деформация и разрушение материалов*. – 2010. – №1. – С. 31-37.
107. Simpson L.A., Puls M.P. The effects of stress, temperature and hydrogen content on hydride-induced crack growth in Zr-2.5 Pct Nb // *Metallurgical Transactions A*. – 1979. – Т. 10. – С. 1093-1105.
108. Ambler J.F.R., Coleman C.E. Acoustic emission during delayed hydrogen cracking in Zr-2.5 wt% Nb alloy // *Proc. Second International Congress on Hydrogen in Metals, Paper 3C10*, Pergamon Press, Oxford. – 1977.

109. Kim Y.S. Driving force for delayed hydride cracking of zirconium alloys // *Metals and Materials International*. – 2005. – T. 11. – C. 29-38.
110. Coleman C. E., McRae G. A., Leitch B. W. Evaluating the risk of delayed hydride cracking in components made from zirconium alloys. – Atomic Energy of Canada Limited, 2011. – №. AECL-CW--128320-CONF-005.
111. Cirimello P., Domizzi G., Haddad R. Influence of metallurgical variables on delayed hydride cracking in Zr–Nb pressure tubes // *Journal of nuclear materials*. – 2006. – T. 350. – №. 2. – C. 135-146.
112. Bind A.K., Sunil S., Gopalan A., Sarkar A., Singh R.N., Kumar S., Ramanjaneyulu P.S. Effect of approach to test temperature on DHC behavior of Zr-2.5Nb pressure tube material. – Bhabha Atomic Research Centre, 2021. – №. BARC--2021/E/006.
113. Shek G.K.W. The effect of material properties, thermal and loading history on delayed hydride cracking in Zr-2.5 Nb alloys: Doctoral dissertation. – University of Manchester, 1998.
114. Shi S.Q., Shek G.K., Puls M.P. Hydrogen concentration limit and critical temperatures for delayed hydride cracking in zirconium alloys // *Journal of nuclear materials*. – 1995. – T. 218. – №. 2. – C. 189-201.
115. Smith R.R., Eadie R.L. High temperature limit for delayed hydride cracking // *Scripta metallurgica*. – 1988. – T. 22. – №. 6. – C. 833-836.
116. Sagat, S., Coleman, C.E., Griffiths, M. and Wilkins, B.J.S., 1994, “The Effect of Fluence and Irradiation Temperature on Delayed Hydride Cracking in Zr-2.5 Nb,” *Zirconium in the Nuclear Industry: Tenth International Symposium, ASTM STP1245*, pp. 62-79.
117. Kim, Y.S., Ahn, S.B., Kim, K.S. and Cheong, Y.M., Temperature Dependence of Threshold Stress Intensity Factor, KIH in Zr-2.5 Nb Alloy and its Effect on Temperature Limit for Delayed Hydride Cracking // *Key Engineering Materials*. – 2006. – T. 326. – C. 919-922.
118. Hong J.D., Kim E., Kook D. Measurement of Threshold Stress Intensity Factor of Delayed Hydride Cracking for Unirradiated Zircaloy-4 Cladding // *Proceedings of the Korean Radioactive Waste Society Conference*. – Korean Radioactive Waste Society, 2019. – C. 74-75.
119. Huang F.H., Mills W.J. Delayed hydride cracking behavior for Zircaloy-2 tubing // *Metallurgical Transactions A*. – 1991. – T. 22. – №. 9. – C. 2049-2060.
120. Shek G.K., Cui J. Effects of Temperature and Thermal Cycling on the Threshold Stress Intensity Factor for Delayed Hydride Cracking in Zr-2.5 Nb Pressure Tubes // *ASME Pressure Vessels and Piping Conference*. – 2009. – T. 43697. – C. 107-116.
121. Simpson L.A., Cann C.D. The effect of microstructure on rates of delayed hydride cracking in Zr-2.5% Nb alloy // *Journal of nuclear materials*. – 1984. – T. 126. – №. 1. – C. 70-73.

122. Coleman C.E., Sagat S., Amouzouvi K.F. Control of microstructure to increase the tolerance of zirconium alloys to hydride cracking // Proceedings of the Metallurgical Society of the Canadian Institute of Mining and Metallurgy. – Pergamon, 1988. – С. 293-304.
123. Sawatzky A., Ledoux G.A., Tough R.L., Cann C.D. Hydrogen diffusion in zirconium-niobium alloys // Metal–hydrogen systems. – Pergamon, 1982. – С. 109-120.
124. Coleman C.E. Effect of Texture on Hydride Reorientation and Delayed Hydrogen Cracking in Cold-Worked Zr-2.5 Nb // Zirconium in the Nuclear Industry, Fifth International Symposium, ASTM STP 754, 1982. P. 393 – 411.
125. Kim, Y.S., Kim, S.S., Kwon, S.C., Im, K.S., Cheong, Y.M. Anisotropic threshold stress intensity factor,  $K_{IH}$  and crack growth rate in delayed hydride cracking of Zr-2.5 Nb pressure tubes // Metallurgical and Materials Transactions A. – 2002. – Т. 33. – С. 919-925.
126. Маркелов В. А., Гусев А. Ю., Котов П. В., Мальгин А. Г. Температурная зависимость и высокотемпературный предел скорости замедленного гидридного растрескивания сплавов циркония // Деформация и разрушение материалов. – 2011. – №. 8. – С. 24-30.
127. Coleman C., Griffiths M, Grigoriev V., Kiseliiov V., Rodchenkov B., Markelov V. Mechanical Properties of Zr-2.5Nb Pressure Tubes Made from Electrolytic Powder // Zirconium in the Nuclear Industry: 15th Int. Symp. ASTM STP 1505, 2009. P. 699-723 (Journal of ASTM International, Vol.4, No. 10, Paper ID JAI101111).
128. Kubo T., Kobayashi Y., Uchikoshi H. Measurements of delayed hydride cracking propagation rate in the radial direction of Zircaloy-2 cladding tubes //Journal of nuclear materials. – 2012. – Т. 427. – №. 1-3. – С. 18-29.
129. Rodgers D.K., Coleman C.E., Griffiths M., Bickel G.A., Theaker J.R., Muir, I., Levi M.R. In-reactor performance of pressure tubes in CANDU reactors // Journal of Nuclear Materials. – 2008. – Т. 383. – №. 1-2. – С. 22-27.
130. Grigoriev V., Alvarez-Holston A.-M., Lysell G., Schrire D., Hallstadius L., Mahmood S.T. and Arimescu I. “Experimental Studies of DHC of Unirradiated and Irradiated Fuel Rod Cladding and Implications to In-Pile Operation and Dry Storage Conditions” (paper presentation, ASTM Zirconium in the Nuclear Industry - 17th International Symposium, Hyderabad, India, February 3–7, 2013).
131. Маркелов В.А., Гусев А.Ю., Котов П.В., Новиков В.В., Сабуров Н.С. Температурные зависимости скорости замедленного гидридного растрескивания оболочек твэлов из сплавов циркония различного состава // Деформация и разрушение материалов. 2012. №. 11. С. 42-47.
132. Coleman C., Inozemtsev V. Measurement of Rates of delayed Hydride Cracking (DHC) in Zr-2.5Nb Alloys – An IAEA Coordinated Research Project // Zirconium in the Nuclear Industry:

- 15<sup>th</sup> Intern. Symp., ASTM STP 1505.- 2009.- P. 244-266 (*J. ASTM Int.*- Vol. 5.- 2008.- paper ID JAI101091).
133. Delayed hydride cracking in zirconium alloys in pressure tube nuclear reactors // Final report of coordinated research project 1998-2002, IAEA-TECDOC-1410, 2004. 86 с.
134. Coleman C., Grigoriev V., Inozemtsev V., Markelov V., Roth M., Makarevicius V., Kim Y.S., Kanwar Liagat Ali, Chakravartty J.K., Mizrahi R., Lalgudi R. «Delayed Hydride Cracking in Zircaloy Fuel Cladding – an IAEA Coordinated Research Programme» // *Nuclear Engineering and Technology. An International Journal of the Korean Society*, V. 41, Number 2, March 2009. P.171-178.
135. Simpson C.J., Elles C.E. Delayed hydrogen embrittlement of Zr-2.5wt.%Nb // *Journal of Nuclear Materials*, 1974. V. 52. P. 289-295.
136. Perryman E.C.W. Pickering Pressure Tube Cracking Experience // *Nuclear Energy*, vol. 17, 1978. P. 95-105.
137. Некрасова Г.Ф. Опыт эксплуатации канальных труб в реакторах CANDU // *Цирконий в атомной промышленности (обзор)*, М: ЦНИИ Атоминформ, 1985, Вып. 14. 36 с.
138. Causey A.R., Urbanic V.F., Coleman C.E. In-reactor oxidation of crevices and cracks in cold-worked Zr-2.5 wt. % Nb // *Journal of Nuclear Materials*, 1977. V. 71. P. 25-35.
139. Рязанцев Е.П., Платонов П.А., Рязанцева А.В., Иванов А.Н., Семёнова Л.В. Изменение свойств материала труб технологических каналов и каналов СУЗ в процессе эксплуатации в реакторах типа РБМК // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение*, 1999. Вып. 2 (77). С. 50-58.
140. CSA (2010) Technical Requirements for the In-service Evaluation of Zirconium Alloy Pressure Tubes in CANDU Reactors. Canadian Standards Association, Mississauga, Ontario, Canada, Nuclear Standard N285.8-10.
141. Grigoriev V., Josefsson B., On the Mechanism of Zircaloy Cladding Axial Splits // *Journal of Nuclear Materials*, 1998. V. 257. P. 99-107.
142. Delayed Hydride Cracking of Zirconium Alloy Fuel Cladding// IAEA-TECDOC-1649, Vienna, Austria, 2010, 77 p.
143. Evaluation of Conditions for Hydrogen Induced Degradation of Zirconium Alloys during Fuel Operation and Storage// IAEA-TECDOC-1781, Vienna, Austria, 2015. 86 p.
144. Lepage, A. D., Ferris, W. A. and Ledoux, G. A., Procedure for adding Hydrogen to small sections of Zirconium alloys, FC-IAEA-03, T1.20.13-CAN-27363-03, November 1998
145. Domizzi G., Lanzani L., Coronel P., Bruzzoni P. Supercharging of zircaloy-4 // *Journal of nuclear materials*. – 1997. – Т. 246. – №. 2-3. – С. 247-251.

146. Choubey, R., DHC Axial Velocity Test Procedure for IAEA Round-Robin Test Program, FC-IAEA-02, T1.20.13-CAN-27363-02, November 1998
147. Sakamoto K., Nakatsuka M., Higuchi T. Simulation of Outside-in Cracking in Boiling Water Reactor Fuel Cladding Tubes under Power Ramp; Zirconium in the Nuclear Industry: 16th International Symposium, ASTM STP 1529. 2011. P. 1054-1072.
148. Colldeweih A. W., Bertsch J. Effect of temperature and hydrogen concentration on the threshold stress intensity factor of radial delayed hydride cracking in fuel cladding // *Journal of Nuclear Materials*. – 2022. – T. 565. – C. 153737.
149. Grigoriev V., Josefsson B., Lind A., Rosborg B. A. Pin-loading tension test for evaluation of thin-walled tubular materials // *Scripta Metallurgica et materialia*. – 1995. – T. 33. – №. 1.
150. Grigoriev V., Josefsson B., Rosborg B. Fracture toughness of Zircaloy cladding tubes // *Zirconium in the Nuclear Industry, Eleventh International Symposium, ASTM STP 1295, 1996*. P. 393 – 411.
151. Coleman C., He Z., Inozemtsev V., Markelov V., Roth M., Alvarez-Holston A. M., Ali L. The Threshold Stress-Intensity Factor,  $K_{IH}$ , for Delayed Hydride Cracking (DHC) in Zircaloy-4 Fuel Cladding – an IAEA Coordinated Research Project (CRP) // *Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting / Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting*. Sendai, Japan, Sept. 14-17, 2014, paper No. 100048
152. Peregud M., Markelov V., Novikov V., Gusev A., Konkov V., Pimenov Y., Agapitov V., Shtutsa, M. Characteristics and Properties of Cladding Tubes for WWER-1000 Higher Uranium Content Fuel Rods // paper presentation, 8-th International Conference WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support, Helena Resort, Bulgaria, September 26–October 4, 2009.
153. Lavchiev K., Johnson K. D., Jadernas D., Askeljung P., Novikov V.V., Markelov V.A., Shevyakov A.Y., Ugrumov A.V., Grekhov M.M., Radostin A.F., Schrire D., Waginder R. “Post Irradiation Examination of Cladding from TVS-K Fuel Rods Operated in Ringhals 3 for Three Cycles” // Paper No A0101 (poster presentation, TopFuel Reactor Fuel Performance 2021, Santander, Spain, October 24-28, 2021).
154. Vasilchenko I., Kushmanov S., Vyalitsin V. Objectives of further development of WWER reactor cores. (paper presentation, 12-th International Conference WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support, Nesebar, Bulgaria, September 16–23, 2017).
155. Markelov V., Novikov V., Saburov N., Gusev A., Kon'kov V., Peregud M., Andersson V. Irradiation test under advanced PWR conditions in the Halden reactor and post-irradiation examination of fuel rod claddings from different zirconium alloys // Presented on TopFuel. – 2018. – T. 30.

156. Garde, A.M. "Effects of Irradiation and Hydriding on the Mechanical Properties of Zircaloy-4 at High Fluence", Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth International Symposium, ASTM STP 1023, L.F.P. Van Swam and C.M. Eucken (West Conshohocken, PA: ASTM International, 1989), 548-569.
157. Grigoriev V., Jakobsson R. DHC axial crack velocity measurements in zirconium alloy fuel cladding // Pin-Loading Tension (PLT) Test Procedure for IAEA Round Robin Test Program. STUDEVIK. – 2005. – №. 05/281.
158. Markelov V., Saburov N., Bekrenev S., Novikov V. Determination of threshold stress intensity factor,  $K_{IH}$ , in DHC tests of fuel claddings by method of constant displacement // TopFuel 2015 - Zurich, Switzerland., 2015.
159. Маркелов В.А., Сабуров Н.С., С.А. Бекренев С.А., Новиков В.В. Определение порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  в испытаниях на ЗГР оболочек твэлов по методу «постоянного перемещения» // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2017. - Вып. 4(91). - С. 47-57.
160. Сабуров Н.С., Бекренев С.А., Маркелов В.А. Апробирование новой методики определения порогового коэффициента интенсивности напряжений  $K_{IH}$  при испытаниях на замедленное гидридное растрескивание образцов оболочек твэлов из сплава Zircaloy-4 // Деформация и разрушение материалов. - 2015. - № 2. - С. 35-39.
161. Сабуров Н.С., Маркелов В.А., Бекренев С.А., Шемяков А.Ю., Гусев А.Ю, Котов П.В. Замедленное гидридное растрескивание оболочек твэлов из сплавов циркония различных систем легирования // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2022. - Выпуск 2(113). - С. 79-95.
162. Coleman C. E., Cox B. Cracking zirconium alloys in hydrogen // Zirconium in the Nuclear Industry. – ASTM International, 1984. – С. 675-690.
163. Петин С.В. Определение характеристик трещиностойкости и сопротивления подрастанию трещин усталости материалов. Теоретические основы. // Курс лекций – СПб Политехнический университет, 2010. – 52с.
164. Puls M. P. Delayed Hydride Cracking: Theory and Experiment. The effect of hydrogen and hydrides on the integrity of zirconium alloy components: delayed hydride cracking. – Springer Science & Business Media, 2012.
165. Плясов А.А., Федотов А.В., Сабуров Н.С., Михеев Е.Н., Тенишев А.В., Исаенкова М.Г, Михальчик В.В. Пределы растворимости водорода в циркониевых сплавах Э110опт и Э635 // Ядерная физика и инжиниринг. - 2023. - том 14. - № 1. - С. 12–21.

166. Oh J. Y., Kim I. S., Kim Y. S. A normalization method for relationship between yield stress and delayed hydride cracking velocity in Zr-2.5 Nb alloys // Journal of nuclear science and technology. – 2000. – Т. 37. – №. 7. – С. 595-600.
167. Kearns J. J. Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4 // Journal of nuclear materials. – 1967. – Т. 22. – №. 3. – С. 292-303.
168. Sawatzky A. The diffusion and solubility of hydrogen in the alpha phase of Zircaloy-2 // Journal of Nuclear Materials. – 1960. – Т. 2. – №. 1. – С. 62-68.
169. Sunil, S., Bind A., Khandelwal, H., Singh, R., Chakravartty, J., Effect of specimen thickness on DHC velocity for Zr-2.5 Nb alloy pressure tube material //Journal of Nuclear Materials. – 2015. – Т. 467. – С. 373-382.
170. Sunil, S., Bind, A., Murty, T., Singh, R., Avinash, G., Singh I. Effect of Specimen Thickness on Threshold Stress Intensity Factor (KIH) Associated with DHC in Zr-2.5 Nb Alloy Pressure Tube Material //Materials Performance and Characterization. – 2021. – Т. 11. – №. 2.
171. Abolhassani, S., Bart, G., Bertsch, J. J., Grosse, M., Hallstadius L., Hermann A., Wiese, H. “Corrosion and Hydrogen Uptake in Zirconium Claddings Irradiated in Light Water Reactors,”// Zirconium in the Nuclear Industry: 17th International Symposium, STP1543, R. Comstock and P. Barberis, Eds., ASTM International, West Conshohocken, PA, 2015, pp. 540–573.
172. Tiffany, C. F. and Masters, J. N., “Applied Fracture Mechanics,” Fracture Toughness Testing and Its Applications, ASTM STP381, W. F. Brown, Jr., Ed., ASTM International, Philadelphia, PA, 1965, pp. 249–277.
173. Горохов А.К., Кобелев С.Н., Семиглазов С.В., Филимонов П.Е, Медведев А.В, Богатырь С.М., Лаговский В.Б. “Расчетные исследования локальных энерговыделений и прочности твэлов в активной зоне ВВЭР-1000 в четырехгодичном топливном цикле” // 2-я Всероссийская научно-техническая конференция «Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР», Подольск, 2001, т. 2, с 3-9.
174. Плясов А. А. Механизмы деградации свойств оболочек твэлов тепловых реакторов в условиях сухого контейнерного хранения ОЯТ // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. – 2019. – №. 4. – С. 144-159.
175. Мазаев А.О., Кобылянский А.О., Звир Е.А., Чертопятов Е.В. Изменение механических свойств оболочки в результате термических испытаний, моделирующих режимы сухого хранения твэлов ВВЭР-1000 // Физика и химия обработки материалов. – 2018. – №. 3. – С. 5-11.

176. Einziger, R. E., Tsai, H., Billone, M. C., and Hilton, B. A., "Examination of Spent Pressurized Water Reactor Fuel Rods after 15 Years in Dry Storage," Nucl. Tech., Vol. 144, 2003, No. 2, pp. 186–200.
177. Sasahara, A. and Matsumura, T., "Post-Irradiation Examinations Focused on Fuel Integrity of Spent BWR-MOX and PWR-UO<sub>2</sub> Fuels Stored for 20 Years," Nucl. Eng. Design, Vol. 238, No. 5, 2008, pp. 1250–1259.
178. Raynaud, P. A. C. and Einziger, R. E., "Cladding Stress during Extended Storage of High Burnup Spent Nuclear Fuel," J. Nucl. Mater., Vol. 464, 2015, pp. 304–312.

## **ПРИЛОЖЕНИЯ**



ВНИИНМ  
РОСАТОМ

ОРГАНИЗАЦИЯ АО «ТВЭЛ»

**Акционерное общество  
«Высокотехнологический научно-  
исследовательский институт  
неорганических материалов имени  
академика А.А. Бочвара»  
(АО «ВНИИНМ»)**

ул. Рогова, д. 5а, Москва, 123098  
Телефон: (499) 190-89-99,  
E-mail: vniinm@rosatom.ru  
ОКПО 07625329, ОГРН 5087746697198  
ИНН 7734598490, КПП 775050001

№ 1/345 от 15.02.24

УТВЕРЖДАЮ

Заместитель генерального директора  
АО ВНИИНМ



В.И. Кузнецов

### АКТ

О практическом использовании результатов диссертационной работы Сабурова Николая Сергеевича «Стойкость к замедленному гидричному растрескиванию оболочек твэлов из сплавов циркония», представленной на соискание учёной степени кандидата технических наук по специальности 2.6.1 – «Металловедение и термическая обработка металлов и сплавов»

Разработанный в рамках диссертационной работы Н.С. Сабурова метод «постоянного перемещения» для испытаний на замедленное гидридное растрескивание (ЗГР) образцов оболочек твэлов из сплавов циркония по определению порогового коэффициента интенсивности напряжений ( $K_{Iп}$ ) широко используется в АО «ВНИИНМ» при проведении таких испытаний по договорам с АО «ТВЭЛ». Практическая новизна метода заключается в поддержании постоянного раскрытия берегов трещины в образце за счёт фиксации перемещения подвижного захвата испытательной системы. При этом, рост трещины сопровождается смещением точек приложения нагрузки, вследствие чего происходит снижение нагрузки, регистрируемое программным обеспечением системы. Метод позволяет в одном эксперименте определять также скорость роста трещины ( $V_{ЗГР}$ ) и её зависимость от  $K_I$  в широком диапазоне значений.

Полученные в диссертационной работе экспериментальные данные по основным параметрам ЗГР ( $K_{Iп}$  и  $V_{ЗГР}$ ) и их температурным зависимостям для оболочечных труб из циркониевых сплавов, включая Э110опт, будут использованы в коде СТАРТАП для построения модели роста трещины ЗГР в условиях сухого хранения отработавших ТВС.

Начальник отдела разработки циркониевых материалов,  
кандидат технических наук

Шевяков А.Ю.

# Evaluation of Conditions for Hydrogen Induced Degradation of Zirconium Alloys during Fuel Operation and Storage

*Final Report of a Coordinated Research  
Project 2011–2015*

**IAEA**

International Atomic Energy Agency

## CONTRIBUTORS TO DRAFTING AND REVIEW

Aioanei, L.	Regia Autonoma Tehnologii pentru Energia Nucleara, Romania
Ali, K.L.	Pakistan Institute of Nuclear Science and Technology, Pakistan
Alvarez-Holston, A.M.	Studsvik Nuclear, Sweden
Astrakhantsev, M.	A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Russian Federation
Bekrenev, S.	A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Russian Federation
Buyers, A.	Canadian Nuclear Laboratories, Canada
Castagnet, M.	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Brazil
Chakravartty, J.	Bhabha Atomic Research Centre, India
Chernyayeva, T.	Kharkov Institute of Physics and Technology, Ukraine
Coleman, C.E.	Canadian Nuclear Laboratories, Canada
Correa, O.	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Brazil
Grigoriev, V.	Studsvik Nuclear, Sweden
Grybenas, A.	Lithuanian Energy Institute, Lithuania
He, Z.	Canadian Nuclear Laboratories, Canada
Inozemtsev, V.	International Atomic Energy Agency
Johansson, B.	Studsvik Nuclear, Sweden
Kim, Y.S.	KAERI, Republic of Korea
Kotov, P.	A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Russian Federation
Kriukiene, R.	Lithuanian Energy Institute, Lithuania
Makarevicius, V.	Lithuanian Energy Institute, Lithuania
Markelov, V.	A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Russian Federation
McDonald, D.	Canadian Nuclear Laboratories, Canada
Mizrahi, R.	Comisión Nacional de Energía Atómica, Argentina
Nitu, A.	Regia Autonoma Tehnologii pentru Energia Nucleara, Romania
Novikov, V.	A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Russian Federation
Ostapov, A.	Kharkov Institute of Physics and Technology, Ukraine
Papaioannou, D.	Joint Research Centre – Institute for Transuranium Elements, European Union

Ramanathan, L.	Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Brazil
Roth, M.	Regia Autonoma Tehnologii pentru Energia Nucleara, Romania
Sakamoto, K.	Nippon Nuclear Fuel Development, Japan
Saburov, N.	A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials, Russian Federation
Singh, R.N.	Bhabha Atomic Research Centre, India
Sunil, S.	Bhabha Atomic Research Centre, India
Stjärnsäter, J.	Studsvik Nuclear, Sweden
Vallence, S.	Paul Scherrer Institute, Switzerland

#### **Research Coordinated Meetings**

Vienna, Austria, 24-28 October 2011

Villigen, Switzerland, 10-14 December 2012

Mito, Japan, 8-12 September 2014

#### **Consultants Meetings**

Chalk River, Canada, 14-16 January 2014

Vienna, Austria, 3-5 March 2015