

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»)

Сабуров Николай Сергеевич

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

2.6.1 - Металловедение и термическая обработка металлов и сплавов

Автореферат диссертации
на соискание учёной степени кандидата технических наук

Научный руководитель:
доктор технических наук, главный научный сотрудник АО «ВНИИНМ»
Маркелов Владимир Андреевич

Москва - 2024

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность

Оболочки твэлов и другие конструктивные элементы тепловыделяющих сборок (ТВС) из сплавов циркония в процессе работы в активной зоне водоохлаждаемых реакторов подвержены коррозии и наводороживанию. 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). Впервые при эксплуатации такое растрескивание с образованием сквозных трещин наблюдали для труб давления в канальных реакторах CANDU и РБМК. С механизмом ЗГР связывают и растрескивание топливных оболочек из сплава Zircaloy в кипящих водяных реакторах (BWR), происходившее с образованием сквозных длинных осевых трещин. В результате чего в реакторной воде увеличивается содержание урана и продуктов деления топлива, приводя к нарушению радиационной обстановки на АЭС. Случаев ЗГР оболочек твэлов при эксплуатации в реакторах с водой под давлением типа PWR и ВВЭР 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.

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

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

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

В качестве материала оболочек твэлов используются сплавы циркония разных систем легирования. 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_{IH} и $V_{ЗГР}$ для оболочек твэлов из сплавов Zircaloy. 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_{IH} . 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_{IH} и $V_{ЗГР}$) 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_{IH} и $V_{ЗГР}$ 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 гидрида 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 гидрида 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 $K_{I\text{H}}$ и $V_{\text{ЗГР}}$, с наименьшими затратами времени и ресурсов.

- Результаты определения $K_{I\text{H}}$ и $V_{\text{ЗГР}}$ 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 INISM'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.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В разделе **общая характеристика работы** обоснована актуальность темы, показана степень проработки проблемы, сформулирована цель и поставлены задачи исследования, показаны научная новизна и практическая значимость работы, представлены основные положения, выносимые на защиту, отмечены достоверность полученных результатов, личный вклад, апробация и публикации по теме диссертации.

В **первой главе** приведен аналитический обзор литературы по теме диссертационной работы. Рассматриваются случаи ЗГР на практике в оболочках твэлов и трубах давления. Описаны механизм и условия для проявления ЗГР, его основные параметры, модельные представления и закономерности. При ЗГР водород диффундирует в вершину напряжённой микротрещины и, с достижением содержания сверх предела растворимости в цирконии, выделяется в виде гидроксида циркония, который, увеличиваясь до критического размера, затем хрупко разрушается под действием растягивающего напряжения определённой величины. Далее процесс повторяется, приводя к прерывистому росту трещины (рисунок 1а). Такой характер процесса ЗГР подтверждается наличием в изломе чередующихся участков хрупкого разрушения и вязких перемычек в виде, так называемых, бороздок (рисунок 1б), расстояние между которыми характеризует критический размер растрескивающегося гидроксида. Процесс ЗГР описывается зависимостью между скоростью роста трещины и коэффициентом интенсивности напряжений K_I в её вершине (рисунок 1в).

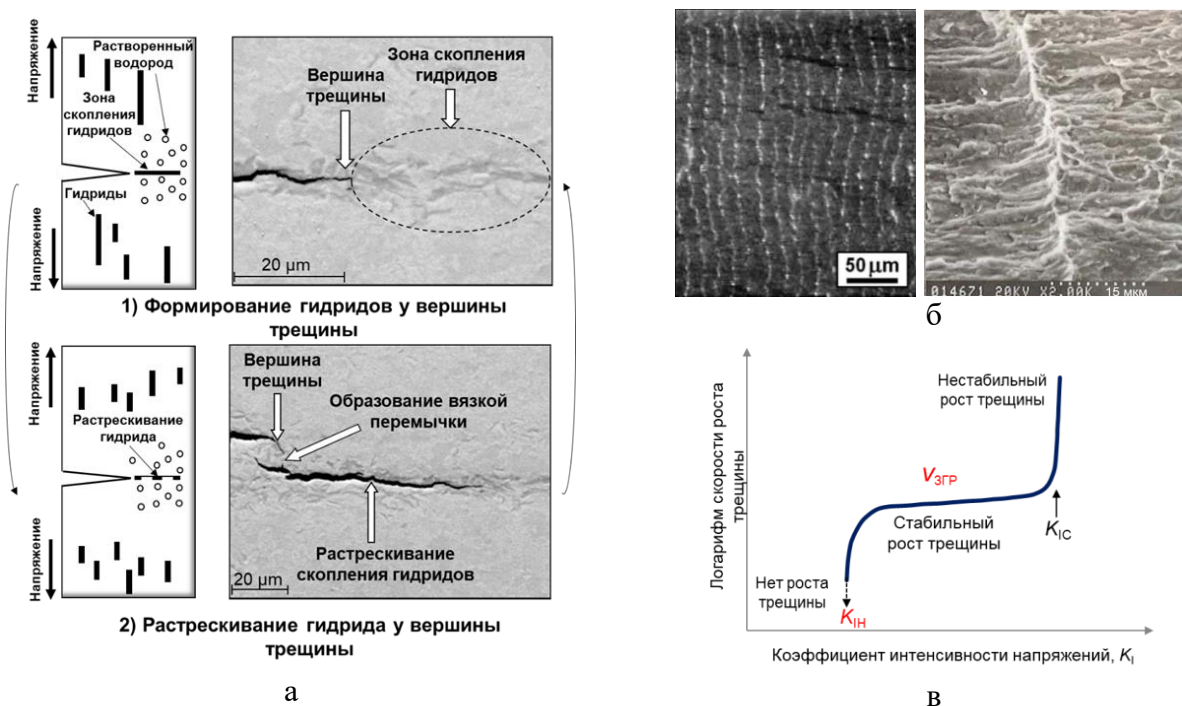


Рисунок 1 – Схема прерывистого роста трещины ЗГР (а) с образованием бороздок в изломе (б) и зависимость скорости роста трещины от коэффициента интенсивности напряжений (в)

Определяющими в этой зависимости являются основные параметры ЗГР - K_{II} и $V_{ЗГР}$, величина которой практически постоянна на участке стабильного роста трещины.

На основе анализа, приведенной в аналитическом обзоре информации, определены цель и задачи диссертационного исследования.

Во второй главе приведены характеристики материалов и образцов для испытаний, экспериментальные процедуры и методики исследований.

Материалом послужили образцы оболочечных труб с наружным диаметром $\varnothing$ 9,5 мм и толщиной стенки 0,57 мм из отечественных сплавов Э110опт и Э635М и зарубежного сплава Zircaloy-4 (таблица 1).

Таблица 1 – Легирующий состав, структура и текстура исследуемого материала труб

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			
α -Zr зерна	Вытянуты в осевом направлении; начало рекристаллизации		
Выделения второй фазы	Частицы β -Nb	Интерметаллиды Zr,Nb,Fe	Интерметаллиды Zr,Fe,Cr
Текстура			
F_R	0,59	0,57	0,58
F_T	0,35	0,38	0,37
F_L	0,06	0,05	0,05

Сплав Э110опт является основным материалом тонкостенных (за счёт увеличения внутреннего диаметра) оболочек твэлов ВВЭР с увеличенной загрузкой урана, и оболочек твэлов ТВС-К, проходящих опытно-промышленную эксплуатацию в реакторах PWR на АЭС «Ringhals» (Швеция). Сплав Э635М в качестве оболочек твэлов ВВЭР-1000 эксплуатировался на блоке 2 Балаковской АЭС до выгорания топлива 60 МВт·сут/кгU и, наряду с Э110опт, испытан в петле Халден реактора в условиях водно-химического режима с 10 ppm Li. Материалом из сплава Zircaloy-4 была стандартная оболочечная труба PWR производства фирмы Sandvik (Швеция) в состоянии CWSR после конечного отжига 480 °С – 3,5 часа. Она же испытывалась автором в рамках участия в проекте МАГАТЭ 2011-2015. В производстве для оболочек твэлов трубы из сплавов Э110опт и Э635М подвергаются конечному отжигу в обеспечение рекристаллизованного структурного состояния (RXA). Прочность таких труб достаточно низкая (рисунок 2а), и инициировать ЗГР в испытаниях невозможно из-за притупления вершины усталостной трещины в образце под нагрузкой. 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 возрастает в 1,5-2 раза (рисунок 2а), а структурное состояние и текстура труб сопоставимы с аналогичными

характеристиками для трубы из сплава Zircaloy-4 в состоянии CWSR (таблица 1). Все три сплава имеют однофазную α -Zr матрицу с вытянутыми, деформированными зёрнами и выделениями второй фазы в виде частиц β -Nb или интерметаллидов. На отдельных участках наблюдаются центры зарождения рекристаллизованных зёрен (выделены пунктиром на рисунках 2б-г).

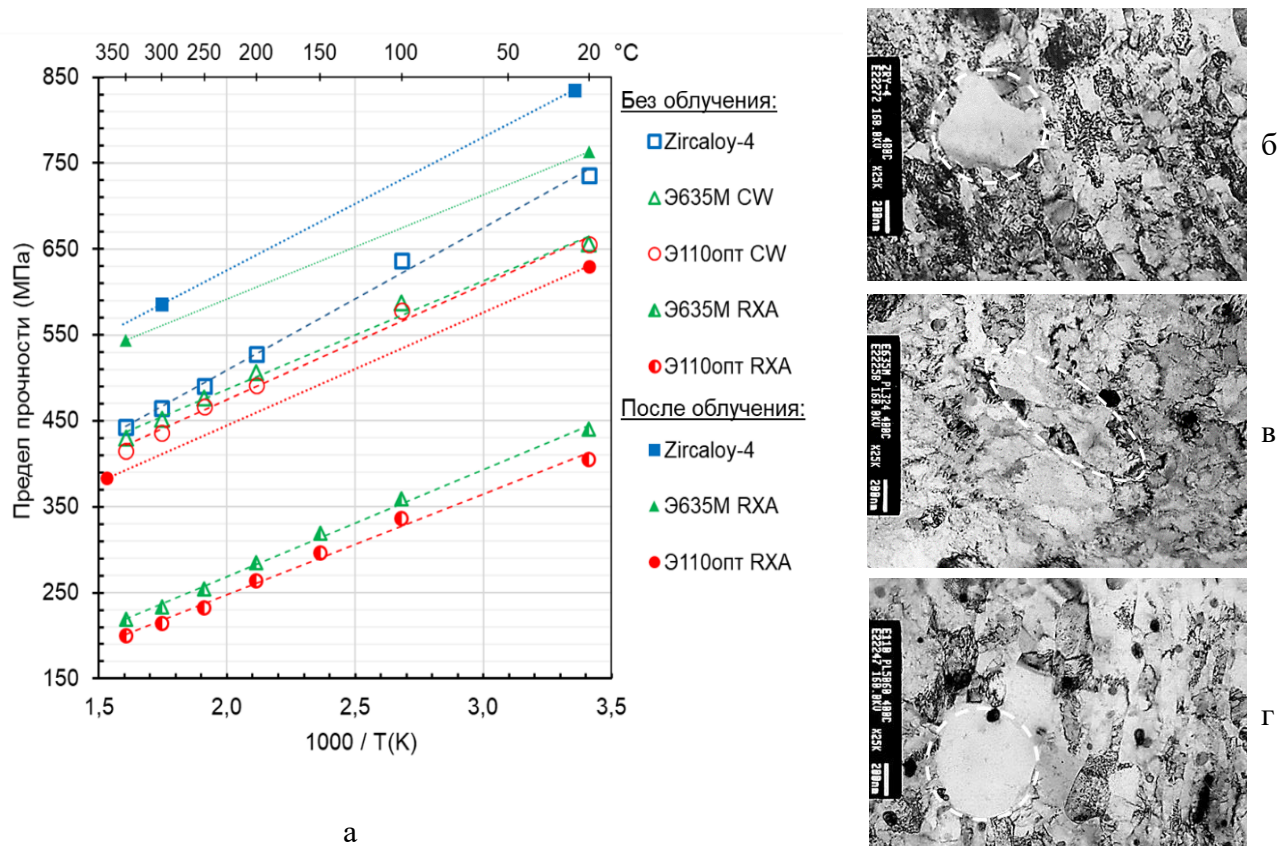


Рисунок 2 - Температурные зависимости предела прочности (а) и микроструктура испытываемых оболочечных труб из сплавов Zircaloy-4 (б), Э635М (в) и Э110опт (г)

Использование деформационного упрочнения для труб из сплавов Э635М и Э110опт позволяет, как и в образцах трубы из сплава Zircaloy-4, инициировать растрескивание по механизму ЗГР для сравнительного определения численных значений его основных параметров.

Кратковременный предел прочности (σ_B) определяли на кольцах по аттестованной методике с использованием универсальной серво-электронной испытательной системы INSTRON 8861. Использование σ_B 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. На рисунке 2а приведены также данные по пределу прочности кольцевых образцов облучённых оболочек из сплавов Э635М и Э110опт в состоянии RXA и сплава Zircaloy-4, необходимые для прогноза вероятности ЗГР циркониевых оболочек твэлов при эксплуатации и сухом хранении отработавших ТВС (глава 6).

Микроструктуру труб анализировали методом трансмиссионной электронной микроскопии (ТЭМ) с использованием электронного микроскопа JEM 2000FXII (JEOL) с ускоряющим напряжением до 200 кВ. Водород добавляли в короткие (45 мм) отрезки труб на установке газозатравочного насыщения при температуре 390 °C до концентрации ~ 120 -150 ppm, превышающей предел растворимости водорода в цирконии во всём температурном диапазоне испытаний на ЗГР. Поглощение водорода контролировали по плотности распределения

гидридов на металлографических шлифах (рисунок 3а) и количественно измеряли методом высокотемпературной экстракции на анализаторе RHEN602 фирмы LECO.

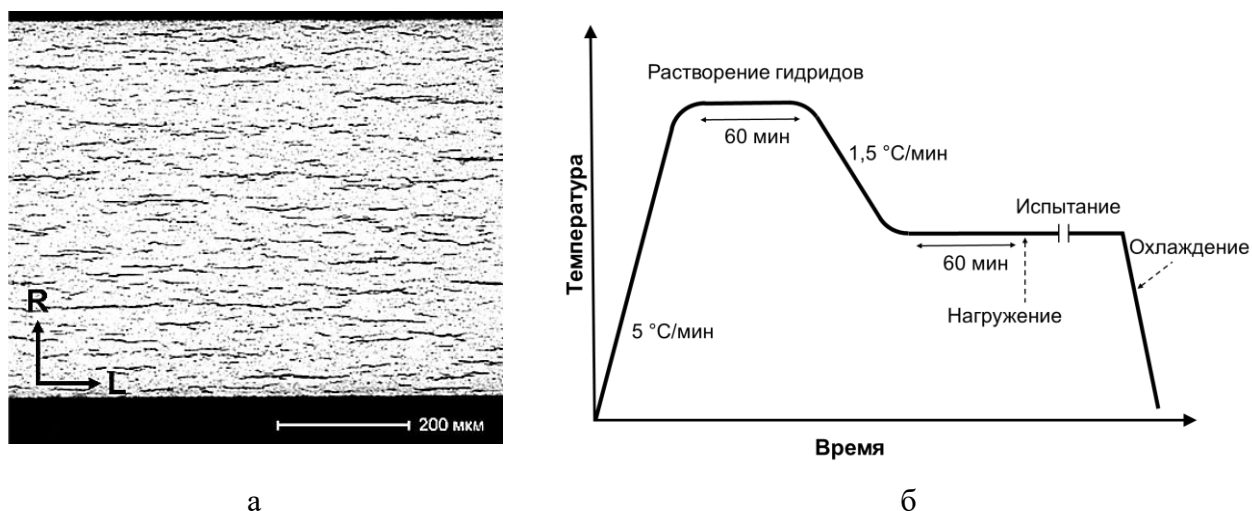


Рисунок 3 - Типичное распределение гидридов в R-L плоскости испытываемых образцов (а) и схема их нагрева, охлаждения и нагружения в экспериментах на ЗГР (б)

Испытания на ЗГР проводили, используя способ нагружения тонкостенного трубчатого образца Pin-Loading Tension (PLT), разработанный специалистами Студсвика (Швеция), и предложенный для испытаний на ЗГР (рисунок 4). В PLT заложен принцип испытания на внецентренное растяжение для определения параметров ЗГР в осевом (L) направлении радиально-осевой (R-L) плоскости оболочечной трубы. Суть 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 4а). Усталостные трещины, составлявшие с надрезами исходную трещину длиной 3 мм, выращивали на машине для динамических испытаний «Instron ElectroPuls E3000». Длина трещин перед испытаниями замерялась по наружной поверхности образцов с помощью лазерного конфокального микроскопа «Lext OLS 4000». Нагружающая оснастка состоит из двух половинок, которые при совмещении образуют цилиндрический держатель (рисунок 4б). Образец насаживается на держатель и разрушение при растяжении идёт параллельно в двух его плоскостях, расположенных на диаметре. Оснастку с образцом устанавливали в захваты, находящиеся в климатической камере испытательной системы INSTRON 8861 (рисунок 4в). Управление параметрами системы (температура, нагрузка, перемещение подвижной траверсы с захватом) осуществлялось в среде программы WaveMatrix 1.6.

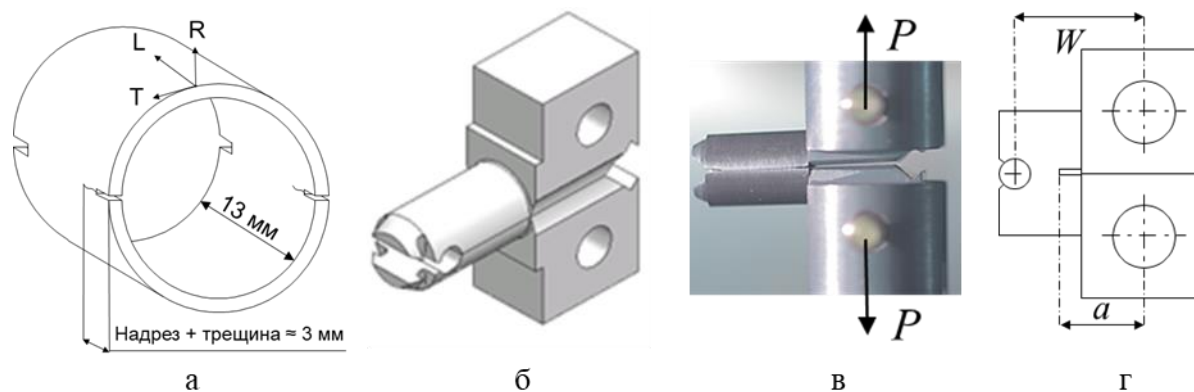


Рисунок 4 - Эскиз образца (а), изображение оснастки (б), схема оснастки в сборе с образцом (в) и изображение образца на оснастке в захватах испытательной системы (г)

Схема нагрева, охлаждения и нагружения образцов в экспериментах на ЗГР выполнялась по согласованной в проекте МАГАТЭ процедуре (рисунок 36). Образец без нагрузки нагревали со скоростью 5 °С/мин до температуры 385°С, выдерживали 60 минут, чтобы большая часть гидридов растворилась, и затем охлаждали со скоростью 1,5 °С/мин до температуры испытания. После выдержки не менее 60 минут для выравнивания и стабилизации температуры производили нагружение. Испытания проводили при температурах в диапазоне от 150 °С до 305 °С.

Изломы, после испытаний на ЗГР и разлома образцов, исследовались с помощью микроскопа «Lext OLS 4000». Длины надреза, усталостной трещины и трещины ЗГР измерялись по методу девяти секущих, согласно ASTM E1820-06, с использованием программного обеспечения микроскопа.

Значение K_I в вершине трещины получали по уравнению:

$$K_I = [P/(2t\sqrt{W})]f(a/W) \quad (\text{МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}) \quad (1)$$

где: P - нагрузка (Н); t - толщина стенки трубы (м);

W - эффективная ширина образца (м) - расстояние от линии нагружения до оси вращения (рисунок 4г);

a - эффективная длина трещины (м) - расстояние от линии нагрузки до вершины трещины (рисунок 4г);

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

корректирующий фактор геометрии для PLT образцов.

Скорость ЗГР во всех экспериментах вычисляли делением длины трещины ЗГР на время её роста.

В третьей главе представлены результаты разработки нового метода испытаний тонкостенных трубчатых образцов на ЗГР с определением K_{II} , в первую очередь, и возможностью вычисления $V_{ЗГР}$. Кроме того, в главе обосновано применение PLT способа нагружения для оценки параметров ЗГР не только для осевого (L), но и радиального (R) роста трещины в (R-L) плоскости оболочки твэла.

На момент начала диссертационной работы для испытаний на ЗГР с определением K_{II} применяли метод многих образцов с построением зависимости $V_{ЗГР}$ от K_I и методы повышения или снижения нагрузки. Результаты использования указанных методов участниками проекта МАГАТЭ 2011-2015 показали существенный разброс данных по K_{II} для образцов оболочки из сплава Zircaloy-4, что побудило автора разработать новый более эффективный метод испытаний, названный «constant displacement method» или метод постоянного перемещения, и рекомендовать его для применения в проекте.

Метод заключается в поддержании постоянного раскрытия берегов трещины в образце за счёт фиксации перемещения. При зафиксированном раскрытии трещины, рост её длины (надрез + усталостная трещина + ЗГР трещина) сопровождается смещением точек приложения нагрузки, вследствие чего происходит снижение нагрузки, регистрируемое программным обеспечением испытательной системы. На рисунке 5а показана схема испытания, пояснения к которой заключаются в следующем.

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 фиксирует постоянное значение перемещения подвижного захвата испытательной системы ($L_V = \text{const}$), задавая постоянную величину раскрытия трещины в образце. Как правило, через инкубационный период, равный времени диффузии 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 плавно понижается.

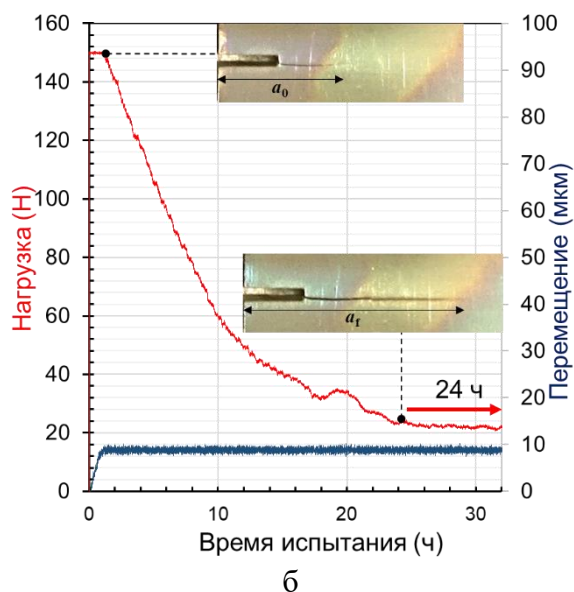
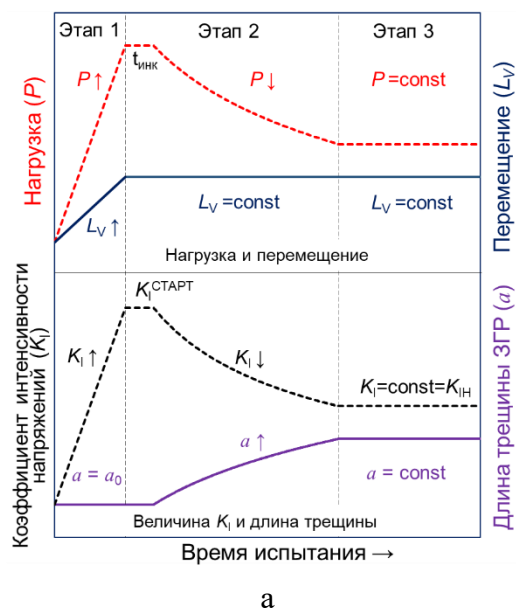


Рисунок 5 - Схема кинетической диаграммы испытания на K_{IH} методом постоянного перемещения (а) и пример диаграммы испытания при 267°C образца из сплава Э635М с изображением трещины на наружной поверхности в начале и в конце эксперимента (б)

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, оставаясь постоянными. По истечении 24 часов, если параметры не изменились, принимается, что K_I при конечной нагрузке и длине трещины a_f соответствует K_{IH} . В процессе испытаний наблюдение за продвижением трещины осуществляли визуально по наружной поверхности одной из сторон образца с помощью оптической системы через наблюдательное окно климатической камеры. На рисунке 5б приведен пример типичной диаграммы снижения нагрузки в испытании на K_{IH} по методу постоянного перемещения с визуальным контролем роста трещины ЗГР.

Разработанный метод, в сравнении с другими, имеет следующие преимущества:

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

Наглядной иллюстрацией преимуществ метода является, впервые показанное в практике испытаний на ЗГР циркониевых оболочек твэлов, построение участка диаграммы зависимости скорости ЗГР от K_I с использованием в эксперименте одного PLT образца (рисунок 6). Как видно, $V_{ЗГР}$ между значениями K_I от 20,5 до 7,5 МПа·√м имеет постоянную величину, и резко снижается вблизи $K_{ИП} = 6,74$ МПа·√м. Для получения такой зависимости методом многих образцов требуется на порядок больше времени и затрат материальных ресурсов.

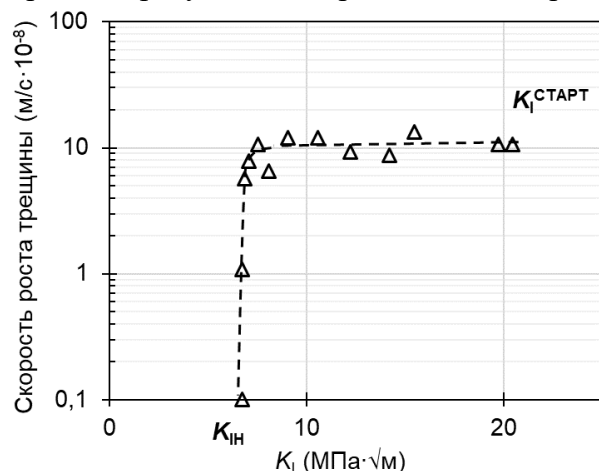


Рисунок 6 – Зависимость скорости ЗГР от K_I по результатам испытания на $K_{ИП}$ методом постоянного перемещения образца Zircaloy-4 при 282 °С.

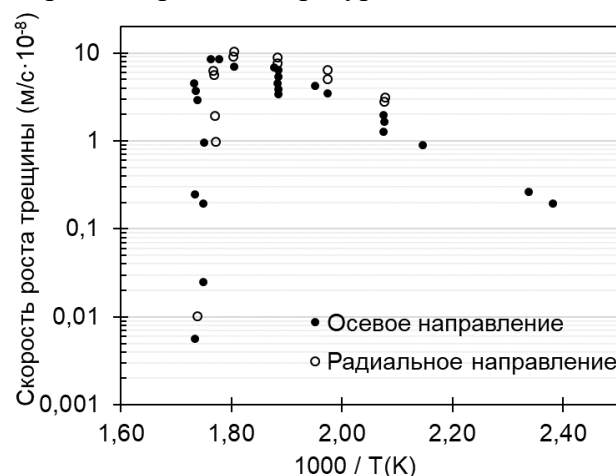


Рисунок 7 – Сопоставление скоростей ЗГР в L и R направлениях по R-L плоскости оболочки из сплава Zircaloy-4

Потенциальное развитие микротрещины по механизму ЗГР в стенке оболочки твэла до образования сквозного дефекта происходит в R направлении по (R-L) плоскости оболочки. Правомерность применения к R направлению трещины в оболочке результатов, полученных в экспериментах на PLT образцах с осевой трещиной, показана на рисунке 7 сопоставлением опубликованных экспериментальных данных по скорости ЗГР в L и R направлениях оболочки из сплава Zircaloy-4. В испытаниях для L направления трещины использовали PLT образцы, а для R направления трещины - трубчатые образцы под внутренним давлением. Несмотря на различный тип образцов и особенности процедур испытаний, значения скоростей ЗГР в L и R направлениях оболочки практически совпадают. По-видимому, и значения $K_{ИП}$ в R-L плоскости образца для трещин, растущих в R и L направлениях, должны быть близкими.

В подтверждение данного предположения автором впервые проведены реперные эксперименты с определением значений $K_{ИП}$ 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 из двух сплавов с близким пределом текучести ($\sigma_{0,2}$), но с различным типом текстуры и различием в вязкости разрушения (dJ/da) (таблица 2). Эксперименты выполняли при температуре 250 °С по схеме трёхточечного изгиба с определением $K_{ИП}$ методом ступенчатого снижения нагрузки. Результаты показывают, что значения $K_{ИП}$ для трещин ЗГР растущих в R и L направлениях радиально-осевой плоскости близки между собой как для трубы с тангенциальной ($f_R/f_T = 0,75$), так и для трубы с радиальной ($f_R/f_T = 1,24$) текстурой.

Таким образом, значения основных параметров ЗГР ($K_{ИП}$ 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.

Таблица 2 – Результаты по K_{IH} 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	Направление трещины	K_{IH} , МПа·√м
Zr-2,5Nb	0,75	500 ± 3	342,1 ± 7,1	R	10,5
				L	9,1
Э635	1,24	509 ± 6	266,7 ± 3,9	R	6,9
				L	7,2

В четвертой главе приведены результаты испытаний по определению основных параметров ЗГР (K_{IH} и $V_{ЗГР}$) с построением их температурных зависимостей для оболочек твэлов из исследуемых сплавов и оценкой стойкости этих сплавов к ЗГР.

Процесс ЗГР в сплавах циркония термически активируемый, и скорость роста трещины подчиняется соотношению Аррениуса в широком интервале температур:

$$V_{ЗГР} = A \exp (-Q/RT) \quad (2)$$

где: Q – энергия активации для ЗГР, кДж/моль; T – температура, К;

R – газовая постоянная (8.314 кДж/моль К); A – константа.

Для испытываемого материала существует температура (T_{max}), при которой $V_{ЗГР}$ имеет максимальное значение. Выше T_{max} наблюдается резкое отклонение от уравнения (2) и быстрое снижение скорости роста трещины ЗГР в узком температурном интервале вплоть до прекращения растрескивания.

На рисунках 8а и 8б для исследованных сплавов построены температурные зависимости скорости роста трещины ЗГР, с использованием данных по $V_{ЗГР}$ из экспериментов на K_{IH} , и данных по $V_{ЗГР}$ для этих сплавов, полученных ранее в прямых экспериментах на скорость ЗГР.

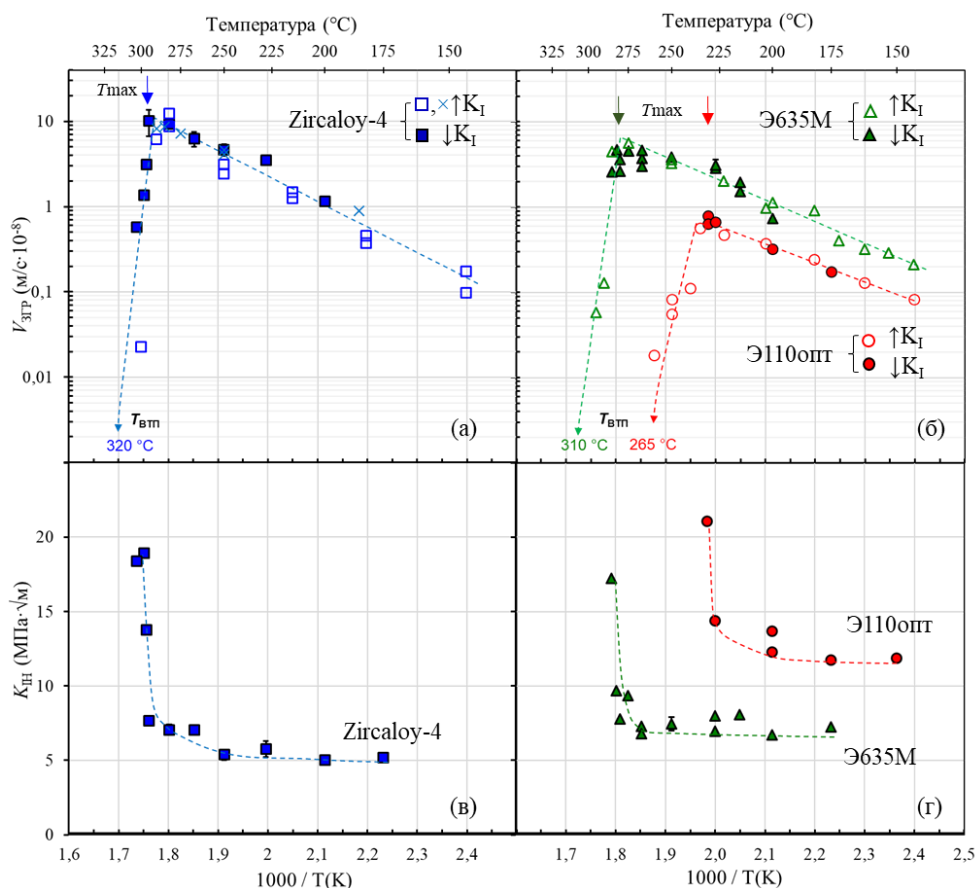


Рисунок 8 – Температурные зависимости $V_{ЗГР}$ и K_{IH} для оболочек твэлов из исследуемых сплавов

В прямых испытаниях на скорость ЗГР образец находится под нагрузкой постоянной величины, и трещина растет в условиях постепенного увеличения K_I (на рисунках 8а и 8б точки со стрелкой вверх $\uparrow K_I$). В испытаниях на K_{IH} , наоборот, трещина ЗГР продвигается в условиях постепенного уменьшения K_I (на рисунках 8а и 8б точки со стрелкой вниз $\downarrow K_I$). При этом исходная величина K_I в обоих случаях была примерно одинаковая. Как видно на рисунках 8а и 8б, значения $V_{ЗГР}$, полученные по результатам испытаний на K_{IH} и в прямых экспериментах на скорость ЗГР, хорошо ложатся в одну температурную зависимость для каждого из сплавов, подтверждая постоянство величины скорости ЗГР на этапе стабильного роста трещины в диапазоне между K_{IH} и K_{IS} . Построенные зависимости для сплавов имеют подобный вид, но с различиями в величине энергии активации (таблица 3), характеризующей степень влияния температуры на $V_{ЗГР}$ и определяющей угол наклона прямой для $V_{ЗГР}$ в температурном интервале Аррениуса. Различается также уровень самих значений $V_{ЗГР}$. При этом наиболее существенно для сплава Э110опт, у которого скорость ЗГР при всех температурах значительно меньше. Заметное различие наблюдается и в значениях температур для максимальной скорости роста трещины (T_{max}) (таблица 3), ниже которых $V_{ЗГР}$ подчиняется соотношению (2). Выше T_{max} скорости роста трещины ЗГР резко снижаются на 2-3 порядка в сравнительно узком температурном интервале, составляющем до 15°C для Zircaloy-4 и Э635М, и порядка 30°C для Э110опт, приближаясь с дальнейшим снижением $V_{ЗГР}$ до нуля к верхнему температурному пределу для ЗГР ($T_{ВТП}$), оценочные значения которого для исследуемых оболочек также приведены в таблице 3. Выше $T_{ВТП}$ оболочки имеют иммунитет к ЗГР.

Таблица 3 – Характеристики ЗГР для необлучённых оболочек из исследованных сплавов

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

На рисунках 8в и 8г для сплавов построены температурные зависимости K_{IH} в аналогичных координатах по температуре, как и для $V_{ЗГР}$ на рисунках 8а и 8б. В целом температурные зависимости K_{IH} для трёх сплавов подобны, как и температурные зависимости $V_{ЗГР}$. Полученные корреляции между K_{IH} и $V_{ЗГР}$ показывают, что в температурном интервале Аррениуса для $V_{ЗГР}$ экспериментальные значения для K_{IH} имеют слабую зависимость от температуры, что согласуется с результатами теоретических исследований. Минимальные значения K_{IH} для сплавов в этом интервале температур имеют значения, представленные в таблице 3. Вблизи и выше температур T_{max} K_{IH} для сплавов резко возрастает.

Чем выше минимальное значение K_{IH} и ниже $V_{ЗГР}$, тем выше стойкость к ЗГР сплава. Поэтому, данные на рисунке 8 однозначно свидетельствуют, что по возрастанию стойкости к ЗГР исследованные сплавы располагаются в ряд Zircaloy-4, Э635М, Э110опт, с очевидным превосходством последнего.

В пятой главе приведены результаты фрактографического анализа изломов гидридной трещины с установлением взаимосвязи её рельефа со стойкостью сплава к ЗГР.

Поверхность изломов трещин ЗГР просматривали в стереомикроскопе Stemi 2000-С и на «Lext OLS 4000» в различных режимах освещения с целью наиболее качественного выявления изображения бороздок, которое зависело также от степени окисления излома, определяемой температурой и временем испытания на ЗГР. Расстояние между бороздками вычислялось как отношение длины исследуемого участка в изломе к количеству бороздок на нём.

Наиболее отчётливо бороздки проявлялись в изломах сплава Э110опт, легированного ниобием. При этом чёткий рисунок бороздок, практически по всей длине трещины ЗГР, наблюдался как в испытаниях на $K_{I\text{H}}$ (рисунок 9а), так и в прямых испытаниях на скорость ЗГР (рисунок 9б). Трещины на этих рисунках (как и далее на других) растут слева направо. В изломах образцов сплава Э110опт, в сравнении с двумя другими сплавами, расстояние между бороздками наибольшее из-за большей величины критического размера гидрида в вершине трещины.

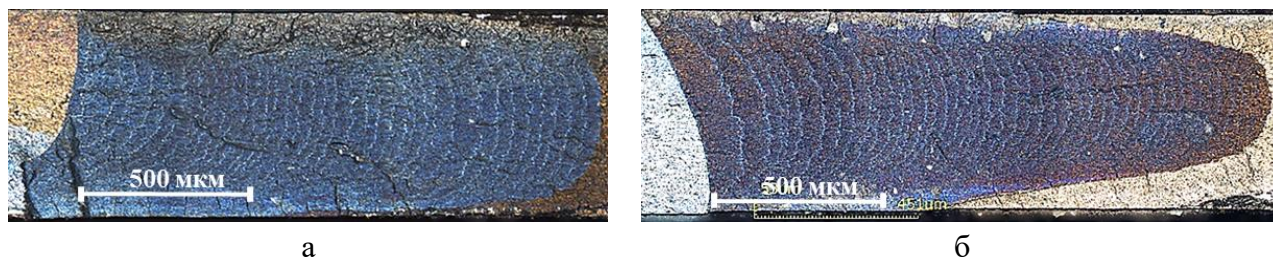


Рисунок 9 – Бороздки на поверхности трещин сплава Э110опт после испытаний на $K_{I\text{H}}$ (а) и скорость ЗГР (б) при температуре 232 °С

В сплаве Э635М (с ниобием и оловом в составе), критический размер гидрида в вершине трещины и соответственно расстояния между бороздками становятся заметно меньше как в испытаниях с определением $K_{I\text{H}}$ (рисунок 10а), так и в испытаниях на скорость ЗГР (рисунок 10б). На рисунке 10в представлены результаты измерений межбороздчатого расстояния в зависимости от локальной величины K_I , изменяющейся в процессе эксперимента. По рисункам 10б и 10в можно видеть, что для сплава Э635М в испытаниях на скорость ЗГР на второй половине длины трещины с увеличением K_I расстояние между бороздками становится заметно меньше. Когда межбороздчатое расстояние достигает величины менее 10 мкм (после 2/3 длины трещины при $K_I > 23\text{--}25 \text{ МПа}\cdot\sqrt{\text{м}}$), чёткая картина бороздок в световом микроскопе пропадает, и становятся видны только их очертания. В испытаниях на $K_{I\text{H}}$ ситуация с бороздками противоположная, расстояние между ними на второй половине длины трещины по мере приближения K_I к $K_{I\text{H}}$ возрастает до среднего значения 30 мкм (рис. 10в) и качество проявления бороздок улучшается (рисунок 10а).

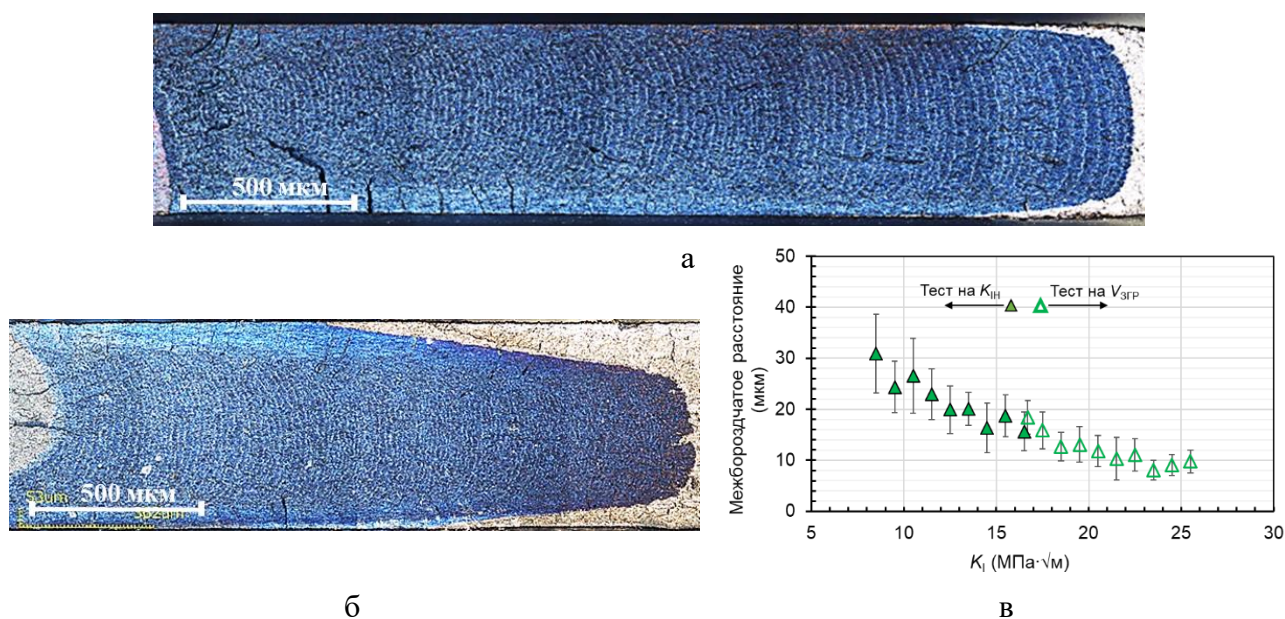


Рисунок 10 – Бороздки на поверхности трещин сплава Э635М после испытаний на $K_{I\text{H}}$ (а) и скорость ЗГР (б) при 267°С и зависимость межбороздчатого расстояния от K_I для этих трещин (стрелки показывают направление изменений K_I в экспериментах) (в)

После испытаний на скорость ЗГР при 250°C среднее расстояние между бороздками в образцах из сплава Э635М по результатам нескольких измерений составляет 12-15 мкм, тогда как в образцах из сплава Э110опт 34-36 мкм. Таким образом, в среднем, расстояние между бороздками в сплаве Э635М в 2,6 раза меньше, чем в сплаве Э110опт.

В сплаве Zircaloy-4 (легированном оловом без ниобия) критическая длина гидроксида в вершине трещины уменьшается более существенно (рисунок 11). В экспериментах на $K_{I\text{H}}$ при температуре 267°C очертания бороздок начинают просматриваться только в отдельных участках завершающего этапа роста трещины ЗГР, когда межбороздчатое расстояние возрастает (рисунок 11а), а наблюдение бороздок в образцах после испытаний на скорость ЗГР с использованием световой микроскопии практически невозможно (рисунок 11б). По внешнему виду завершающий участок трещины ЗГР (рисунок 11а) похож на конечный участок трещины ЗГР образца из сплава Э635М при испытании на скорость ЗГР, когда расстояние между бороздками становится менее 10 мкм (рисунок 10а). Поэтому, можно оценить, что расстояние между бороздками в сплаве Zircaloy-4, например, при температуре 267°C, в 3 раза меньше, чем в Э635М, а в сравнении со сплавом Э110опт меньше в 5-6 раз.



а



б

Рисунок 11 – Трещины ЗГР в образцах из сплава Zircaloy-4 после экспериментов на $K_{I\text{H}}$ (а) и скорость ЗГР (б) при 267 °C

Следует отметить, что сплавы систем Zr-Nb-Sn-Fe и Zr-Sn-Fe из-за большего количества легирующих элементов в твёрдом растворе и наличия интерметаллидов в структуре, обладают более низкими значениями вязкости разрушения, по сравнению с Zr-Nb сплавами. Это проявляется в снижении критического размера гидроксида в вершине трещины ЗГР, что отражается на уменьшении расстояния между бороздками в изломе. Соответственно, и величина $K_{I\text{H}}$ такого материала ниже. Этот факт показан на образцах труб давления из сплавов Zr-2,5Nb и Э635 в таблице 2, имеющих близкий уровень прочности, но заметное различие в вязкости разрушения. Кроме того, в сплавах с низкой вязкостью высота перемычек между растрескиваниями гидридов, естественно, меньше, что влияет на проявление бороздок в микроскопе.

Таким образом, сопоставляя результаты фрактографического анализа с данными по $K_{I\text{H}}$ и $V_{\text{ЗГР}}$ на рисунке 8, можно отметить, что чёткий бороздчатый рельеф трещины ЗГР с наибольшим расстоянием между бороздками является индикатором высокой стойкости сплава Э110опт к разрушению по механизму ЗГР, очевидно, вследствие более высокой вязкости разрушения, свойственной сплавам системы Zr-Nb.

Необходимо отметить наблюдаемые различия в форме трещин ЗГР для образцов после испытаний на скорость ЗГР и испытаний на $K_{I\text{H}}$. Различия обусловлены тем, что испытания на скорость ЗГР проводятся при значениях K_1 значительно выше $K_{I\text{H}}$, что приводит к проявлению

для трещины ЗГР «туннельного» эффекта, когда её длина у боковых поверхностей образца меньше, чем в его центральной части, что отчётливо видно на рисунках 9б, 10б и 11б.

«Туннельный» эффект появляется, когда в вершине трещины не выполняется условие (критерий) линейно-упругой механики разрушения (ЛУМР) по состоянию плоской деформации:

$$K_I < \sigma_s \sqrt{(t/2,5)} \quad (3),$$

где σ_s – прочность материала оболочки; t – толщина оболочки.

В испытаниях на скорость ЗГР, особенно на заключительном этапе с существенным возрастанием K_I , избежать несоблюдения условия (3) для тонкостенных образцов из оболочек практически невозможно. В испытаниях на K_{II} нагрузка и, соответственно, K_I снижаются по мере продвижения трещины. В этом случае, если с приближением к K_{II} критерий (3) выполняется, то «туннельный» эффект трещины отсутствует. При этом наблюдается и увеличение критического размера гидрода в вершине трещины, в результате чего расстояние между бороздками становится больше (рисунки 9а и 10а). По этой причине, пусть недостаточно чётко, но всё же видны бороздки в изломе трещины ЗГР в Zircaloy-4 (рисунок 11а).

«Туннельный» эффект, из-за невыполнения критерия ЛУМР, в испытаниях на K_{II} начинает проявляться при температурах вблизи и выше температурного максимума для скорости ЗГР, когда K_{II} начинает резко возрастать. При этом, чем на большую величину возрастает K_{II} по сравнению с его минимальным значением для сплава, тем в большей степени проявляется «туннельный» эффект трещины в испытаниях (рисунок 12).



Рисунок 12 – «Туннельный» эффект формы трещин ЗГР в испытаниях на K_{II} при температурах выше температурного максимума для скорости ЗГР: а - Э635М (282°C, $K_{II} = 9,7 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$); б – Zircaloy-4 (298°C, $K_{II} = 18,2 \text{ МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$)

Соблюдение критерия ЛУМР можно оценить, подставляя в выражение (3) значения прочности испытываемых материалов, приведенные на рисунке 2а. Из результатов такой оценки следует, что для оболочек из Zircaloy-4 и Э635М минимальные значения K_{II} (5 и 6,7 $\text{МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$, соответственно) являются достоверными, для них критерий (3) выполняется. Для оболочки из Э110опт при определении минимального значения K_{II} (11,5 $\text{МПа} \cdot \sqrt{\text{м}}$), критерий (3) не выполняется. Однако, трещина ЗГР росла практически без «туннельного» эффекта (рисунок 13) и по форме близка к трещинам в испытаниях на K_{II} с соблюдением критерия (3) для Э635М (рисунок 10а) и Zircaloy-4 (рисунок 11а).

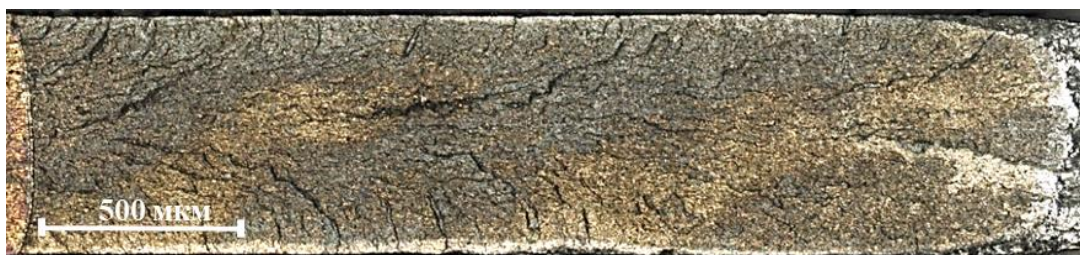


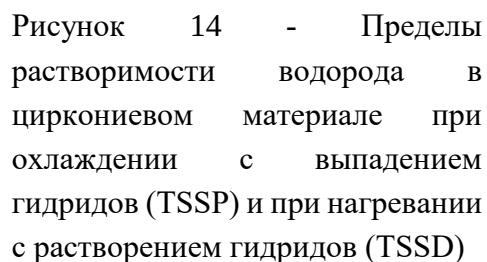
Рисунок 13 – Трещина ЗГР в образце сплава Э110опт после испытания на K_{II} при 150°C

В шестой главе с использованием полученных в работе экспериментальных результатов, и данных аналитического обзора по влиянию облучения на упрочнение и основные параметры ЗГР циркониевых сплавов, дана прогнозная оценка вероятности разрушения по механизму ЗГР исследуемых оболочек ТВЭЛов при эксплуатации в реакторах типа ВВЭР/PWR и в условиях последующего сухого хранения отработавших ТВС.

Вероятность ЗГР оболочек твэлов при эксплуатации в реакторе

- 1) $C_H > C^{TSSP}$, для образования гидрида 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) $K_I > K_{IH}$, напряжения в оболочке должны быть такими, чтобы коэффициент интенсивности напряжений K_I в вершине острого дефекта превысил K_{IH} .

($C_H > C^{TSSP}$). Когда предел растворимости водорода (TSS) в оболочке из циркониевого сплава превышен, в ней выделяются гидриды. Растворимость 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 для исследуемых сплавов приведены на рисунке 14.



В реакторе, когда свежее топливо начинает нагреваться до температуры 350 °C в оболочке исходная концентрация водорода (C_H) не превышает 15 ppm (рисунок 14, точка А). При этой температуре выпадение гидридов 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 достигается нагревом предварительно гидрированного образца до высокой температуры, при которой C_H соответствует точке С на линии TSSD (рисунок 14). Затем образец охлаждают до температуры испытаний (точка В) для выпадения гидридов, обеспечивая максимальную скорость роста трещины.

Фактическое содержание поглощённого водорода при эксплуатации для оболочки из Zircaloy-4 достигает 460 ppm, для оболочек из Э635М и Э110опт - 230 ppm и 120 ppm, соответственно (указаны на линии TSSP, рисунок 14). Таким образом, условие $C_H > C^{TSSP}$ может с запасом выполняться во второй половине эксплуатации для Zircaloy-4. Для Э635М это условие выполняется ближе к концу эксплуатации. А для Э110опт выпадения гидридов происходить не будет из-за малого содержания поглощённого водорода.

($T < T_{ВТП}$). $T_{ВТП}$ для каждого из сплавов определяется по температурной зависимости скорости роста трещины ЗГР в интервале её резкого снижения от максимального значения экстраполяцией до прекращения растрескивания ($V_{ЗГР} \rightarrow 0$). Для необлучённых оболочек $T_{ВТП}$ составляет 320 °C для Zircaloy-4, 310 °C для Э635М и 265 °C для Э110опт (таблица 3). Чтобы спрогнозировать значения $T_{ВТП}$ для этих сплавов при облучении в реакторе необходимо рассмотреть уровень их прочностных свойств в состоянии после облучения. Из данных рисунка 2а следует, что нейтронное облучение увеличивает предел прочности оболочки из Zircaloy-4 при температуре 350 °C в 1,27 раза. Уровень прочности необлучённых оболочек RХА из Э635М и Э110опт до эксплуатации в 1,5-2 раза ниже прочности оболочек из этих сплавов в состоянии СW. Облучение оболочки RХА из Э635М увеличивает её предел прочности по сравнению с необлучённым состоянием при температуре 350 °C в 2,5 раза. При этом значение предела прочности, в сравнении с пределом прочности для необлучённой оболочки в состоянии СW при этой температуре выше в 1,27 раза. Нейтронное облучение оболочки RХА из Э110опт увеличивает её предел прочности по сравнению с необлучённым состоянием при 350 °C в 1,9 раза, показывая меньший эффект радиационного упрочнения сплавов системы Zr-Nb в сравнении со сплавами других систем. При этом, для оболочки RХА из Э110опт за счёт облучения обеспечивается предел прочности такой же, как у оболочки Э110опт в состоянии СW без облучения. Следовательно, деформационное упрочнение оболочки из Э110опт моделирует состояние упрочнения оболочки RХА из этого сплава после нейтронного облучения в реакторе.

Опираясь на данные по пределу прочности облучённых оболочек и влиянию облучения на увеличение $T_{ВТП}$ (на 40 °C, по сравнению с оболочками в необлучённом состоянии) прогнозируем, что $T_{ВТП}$ для облучённой оболочки из Zircaloy-4 составит 360 °C. Учитывая, что для облучённой оболочки RХА из Э635М, в сравнении с необлучённой СW оболочкой, значение предела прочности при 350 °C выше в 1,27 раза, как и для оболочки из Zircaloy-4, также прогнозируем, что значение $T_{ВТП}$ для облучённой RХА оболочки Э635М будет на 40 °C выше, чем у необлучённой СW оболочки, и составит 350 °C. Для облучённой оболочки из Э110опт в состоянии RХА, исходя из данных по прочности (рисунок 2а), за $T_{ВТП}$ следует принять значение 265 °C, как для необлучённой оболочки из этого сплава в состоянии СW.

Таким образом, можно заключить, что условие $T < T_{ВТП}$ для Zircaloy-4 будет выполняться при номинальной (350 °C) температуре эксплуатации оболочки в реакторе, однако скорость роста трещины ЗГР будет достаточно низкой. Для Э635М данное условие, если и будет выполняться, то на пределе возможного, и рост трещины ЗГР будет происходить со скоростью,

близкой к нулю. Для Э110опт условие $T < T_{ВТП}$ не выполняется, так как номинальная температура эксплуатации на 85 °С выше $T_{ВТП}$, поэтому оболочка имеет иммунитет к ЗГР.

($K_I > K_{IH}$). При рассмотрении выполнения данного условия с максимально консервативным подходом следует принять, что минимальные значения K_{IH} , полученные для оболочек в необлучённом состоянии (таблица 3) при температурах более низких, чем эксплуатационные, будут действительны и при 350 °С. С учётом такого подхода и поправкой на облучение, минимальные значения K_{IH} для облучённых оболочек будут на 30 % ниже, чем для необлучённых оболочек, то есть 3,5 МПа·√м для Zircaloy-4, 4,7 МПа·√м для Э635М и 8 МПа·√м для Э110опт.

В соответствии с технической документацией на твэл максимально допустимая глубина дефекта 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 (σ), обеспечивающие при эксплуатации в реакторе превышение прогнозных значений K_{IH} для облучённых оболочек из рассматриваемых сплавов. Для определения таких напряжений в оболочке каждого из сплавов используем следующее соотношение:

$$a = (K_{IH} / \sigma)^2 \times Q / 1,2 \pi \quad (4)$$

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

Вычисления показали, что для оболочки из Zircaloy-4 необходимы напряжения, превышающие 255 МПа, для оболочки из Э635М – 342 МПа, а для оболочки из Э110опт – 583 МПа. Такие напряжения при эксплуатации не допускаются, так как, например, для ВВЭР-1000 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 $K_I > K_{IH}$ для ЗГР при нормальной эксплуатации в реакторе выполняться не будет. Для порогового напряжения 230 МПа и поверхностного дефекта в оболочке глубиной 50 мкм величина K_I равна 3,15 МПа·√м, что не превышает прогнозные значения K_{IH} для всех трёх рассматриваемых сплавов в облучённом состоянии.

Для наглядности приведенные выше данные по C_H и прогнозные оценки значений $T_{ВТП}$ и K_{IH} для оболочек твэлов из трёх сплавов циркония при эксплуатации в реакторе представлены в таблице 4. Для каждого случая в таблице также указано, выполняется ли соответствующее условие.

Таблица 4 – Оценка выполнения условий для ЗГР в оболочках твэлов из трёх сплавов циркония при температуре эксплуатации в реакторе $T=350$ °С

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

* Максимально допустимые в твэле окружные напряжения величиной 230 МПа создают в вершине допустимого дефекта на наружной поверхности оболочки глубиной 50 мкм значение $K_I = 3,15$ МПа·√м

Из приведенных в таблице 4 данных 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 Zircaloy-4 и Э635М два условия выполняются - по концентрации водорода и верхнему температурному пределу, но не выполняется условие по коэффициенту интенсивности напряжений. Для Э110опт не выполняются все три условия, причем с заметным запасом. Поэтому сплав Э110опт имеет наиболее высокую стойкость к ЗГР, и его преимущество над другими сплавами под действием облучения возрастает.

Вероятность ЗГР оболочек твэлов в условиях сухого хранения

В начальный период сухого хранения температура оболочки твэла может превышать температуру эксплуатации, но не должна быть больше 400 °С по требованиям NRC (U.S. Nuclear Regulatory Commission) к хранению топлива PWR. При такой температуре (которая выше температур $T_{ВТП}$ для сплавов) все они будут иметь иммунитет к ЗГР. В этот период может произойти отжиг радиационных дефектов и, как следствие, разупрочнение оболочек. Далее для большего консерватизма выполняемой оценки этот фактор учитывать не будем. С увеличением времени хранения температура медленно уменьшается, как показано на рисунке 15, воспроизводя условия охлаждения к температуре реализации ЗГР, применяемые в лабораторных испытаниях. В соответствии с концентрацией поглощённого при эксплуатации водорода C_H (таблица 4), гидриды в оболочке из Zircaloy-4 будут присутствовать в начале сухого хранения при 400 °С (рисунок 14). В оболочке из Э635М выпадение гидридов начнётся при температуре 365 °С после ~3 лет хранения, а в оболочке из Э110опт при температуре 300 °С после ~10 лет хранения (рисунки 14 и 15). Таким образом, условие $C_H > C^{TSSP}$ для ЗГР при сухом хранении (либо сразу, либо после 3 или 10 лет) для сплавов будет выполняться. Для Zircaloy-4 период иммунитета к ЗГР по температуре закончится через ~3,5 года сухого хранения с достижением оболочкой температуры 360 °С (рисунок 15), соответствующей $T_{ВТП}$ (таблица 4). Для Э635М температурный иммунитет продлится ~4,5 года хранения, а для Э110опт - 18 лет, пока температуры оболочек не достигнут соответствующих значений $T_{ВТП}$, равных 350 °С и 265 °С (рисунок 15, таблица 4).

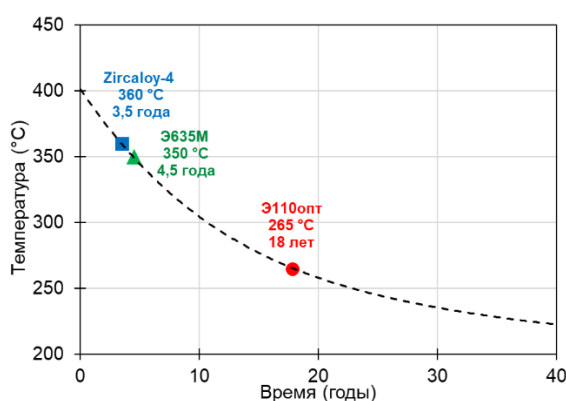


Рисунок 15 - Периоды иммунитета к ЗГР для оболочек твэлов из рассматриваемых сплавов циркония при сухом хранении в зависимости от значения $T_{ВТП}$.

В качестве среды хранения используется инертный газ, давление которого ниже внутреннего давления в твэле от исходного газа-наполнителя и газообразных продуктов деления топлива, что приводит к возникновению растягивающих окружных напряжений в оболочке. Для твэлов с большим выгоранием дополнительный вклад в напряжения вносит контакт топлива с оболочкой. Максимальные напряжения возникают на начальном этапе хранения и снижаются по мере остывания оболочки. Для твэлов PWR требования NRC ограничивают максимальные окружные напряжения величиной 90 МПа. Чтобы инициировать радиальную трещину ЗГР при таком напряжении и значениях K_{IH} , указанных в таблице 4, критический размер (a) первичного

поверхностного дефекта, оцениваемый по формуле (4), для оболочки из 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 стенки оболочки за счёт коррозии). Для оболочки из Э635М критический размер первичного дефекта должен быть 0,72 мм или в 1,26 раза больше толщины, а для оболочки из 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 размером с большую часть 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 этот период, их бы своевременно обнаружили в наблюдениях за отработавшим топливом. Однако сквозных трещин не появилось после 15 и 20 лет сухого хранения топлива PWR, свидетельствуя, что комбинации первичных дефектов и внутреннего давления в твэле было недостаточно, чтобы вызвать ЗГР. Таким образом, проведённый анализ с использованием прогнозных значений $K_{I\text{н}}$ для облучённых оболочек из трёх сплавов циркония, подтверждает заключения (сделанные ранее для оболочек из Zircaloy-4), 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 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.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Разработан и применён для оболочек твэлов из сплавов циркония метод испытаний на ЗГР для определения порогового коэффициента интенсивности напряжений ($K_{I\text{н}}$) 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 $K_{I\text{н}}$, скорость стабильного роста трещины ($V_{\text{ЗГР}}$) и их температурные зависимости, имеющие для сплавов подобный вид, но различающиеся количественно. Максимальная температура (T_{max}), ниже которой $V_{\text{ЗГР}}$ подчиняется соотношению Аррениуса, а $K_{I\text{н}}$ слабо зависит от температуры при минимальных значениях 5; 6,7 и 11,5 МПа·√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, характеризую снижение температурной зависимости $V_{\text{ЗГР}}$ сплавов в приведенной последовательности. Выше T_{max} скорость ЗГР резко снижается с сопутствующим увеличением $K_{I\text{н}}$. 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_{IN} ;

- 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_{IN} 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.

Публикации по теме диссертации, входящие в перечень ВАК:

1. **Сабуров Н.С.,** Бекренев С.А., Маркелов В.А. Апробирование новой методики определения порогового коэффициента интенсивности напряжений K_{IN} 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: 20th 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_{IN} 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_{IN} 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_{IN} , 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_{IN} 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_{IN} 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 гидридному растрескиванию оболочек твэлов из сплавов циркония трёх систем легирования // XI-я Евразийская научно-практическая конференция Прочность неоднородных структур (ПРОСТ 2023). – М., 2023. – С. 73.