

УДК 621.039.531

МЕХАНИЗМЫ РАЗВИТИЯ ПРОДОЛЬНЫХ ТРЕЩИН В ОБОЛОЧКАХ ТВЭЛОВ ПРИ СКАЧКАХ МОЩНОСТИ

© 2023 г. В. В. Новиков^а, А. А. Плясов^а, *

^аВысокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А.А. Бочвара (АО “ВНИИНМ”), Москва, 123060 Россия

*E-mail: alex_plyasov@mail.ru

Поступила в редакцию 20.09.2022 г.

После доработки 27.09.2022 г.

Принята к публикации 27.09.2022 г.

В начале 1990-х гг. в АО “ГНЦ НИИАР” совместно с АО “ВНИИНМ” проводились работы по облучению в реакторе МИР экспериментальных твэлов с оболочкой из сплава Э110 и различными топливными композициями. При повторном изучении результатов этих работ было обнаружено, что за время испытаний твэлы несколько раз оказывались в условиях скачка мощности. Как следствие, отдельные твэлы разгерметизировались, причем оболочка одного из них разрушилась путем распространения продольной длинной трещины. В настоящей работе представлены ранее не публиковавшиеся результаты послереакторных исследований этих разгерметизированных твэлов и проанализированы возможные механизмы разрушения оболочки путем распространения длинной продольной трещины. Показано, что ключевыми факторами, влияющими на образование длинных продольных трещин на оболочках при скачках мощности, являются гидридное охрупчивание и радиационное упрочнение. Однако, имеющиеся к настоящему времени данные не позволяют заключить, какой из рассмотренных механизмов разрушения реализовался в ходе эксперимента.

Ключевые слова: скачок мощности, оболочка твэла, циркониевые сплавы, Э110, продольная трещина, механизмы растрескивания, водородное охрупчивание, замедленное гидридное растрескивание

DOI: 10.56304/S2079562922030320

ВВЕДЕНИЕ

Согласно требованиям регулирующих органов для предотвращения разрушения топлива в режимах эксплуатации, включающих быстрое изменение мощности, новые виды топлива должны проходить испытания на скачок мощности в исследовательском реакторе. Каждый производитель топлива имеет свою программу испытаний, поскольку конкретный сценарий скачка мощности определяется типом реактора и параметрами топлива. Главными результатами подобных экспериментов являются база данных по безопасным параметрам эксплуатации твэлов, а также экспериментальное обоснование стойкости топлива в условиях интенсивного взаимодействия таблетки с оболочкой. Кроме того, данные эксперименты позволяют пролить свет на возможные механизмы разгерметизации оболочек твэлов [1–4]. В вопросе выявления механизмов немаловажную роль играют также специальные модельные лабораторные эксперименты (power ramp simulations) [5].

В ходе эксперимента на скачок мощности линейная мощность отдельного твэла может дости-

гать величин 400–600 Вт/см [2] в зависимости от сценария. Быстрый подъем мощности в первую очередь вызывает тепловое расширение всех элементов твэла. Далее из-за относительно низкой теплопроводности топлива возникает сильный температурный градиент в таблетке, и как следствие, она растрескивается с выходом газообразных продуктов деления в объем твэла. Коэффициент температурного расширения диоксида урана превышает соответствующую величину для оболочечного циркониевого сплава. Поэтому в ходе быстрого роста температуры таблетка пытается расширяться быстрее, чем это делает оболочка. Все перечисленные факторы приводят к возникновению таких эффектов, как взаимодействие таблетки с оболочкой (pellet-cladding interaction (PCI)) и механическое взаимодействие таблетки с оболочкой (pellet-cladding mechanical interaction (PCMI)), которые, в свою очередь, способны вызвать разгерметизацию.

Из опубликованных к настоящему времени данных следует, что обнаружены три возможных механизма, ответственных за разгерметизацию оболочки в экспериментах на скачки мощности [1–5]: коррозионное растрескивание под напря-

жением КРН (англ. PCI/SCC) водородное охрупчивание и замедленное гидридное растрескивание ЗГР (англ. DHC). Все эти механизмы связаны с воздействием на оболочку твэла коррозионной среды, прежде всего, теплоносителя, а также активных продуктов деления. Так КРН возникает с внутренней стороны твэла, когда происходит выброс йода под оболочку, и развивается в присутствии растягивающих напряжений, вызванных давлением топлива (РСМ). Характерной особенностью разрушения по механизму КРН являются небольшой сквозной дефект типа “pinhole”, внутренняя поверхность которого отражает коррозионное растрескивание по границам зерен [6–8]. Водородное охрупчивание может возникнуть, когда по всему сечению оболочки или его части возникает обширная сеть гидридов, включающая радиально-ориентированные. Критическим параметром для водородного охрупчивания является окружное растягивающее напряжение [9]. Замедленный процесс, связанный с диффузией водорода к вершине первоначальной радиальной микротрещины [10]. Какой из перечисленных механизмов реализуется в данном конкретном случае, зависит от условий, в которых находится оболочка в ходе скачка мощности.

Топливо реактора BWR с биметаллическими оболочками из сплавов Циркалой-2 и Циркалой-4, отработавшее от трех до пяти циклов, тестировалось при скачке мощности в исследовательском реакторе (JMTR) в начале 2000-х гг. [1]. После облучения твэлы с разрушившимися оболочками достаточно подробно исследовались [2, 3]. Из 25 твэлов разгерметизировались 5: по одному, отработавшему 3 и 4 цикла в реакторе и три, отработавших 5 циклов. Мощность первых 4-х твэлов при скачке поднималась непрерывно, а пятый твэл испытывался при ступенчатом подъеме мощности. Результаты металлографии и фрактографии оболочек разгерметизированных твэлов показали, что один из них разрушился по механизму PCI/SCC, а на остальных твэлах – отчетливо наблюдаются продольные трещины длиной от 4 до 40 мм. Длинные продольные трещины распространялись в направлении снаружи-внутри в радиальном направлении практически на всю толщину стенки оболочки. Только у внутренней стенки наблюдалась пластичность – трещина распространяется под углом 45° к радиальному направлению.

Кроме того, металлография показала наличие гидридов радиальной ориентации длиной порядка 70 мкм около внешней поверхности оболочек твэлов, отработавших четыре и пять циклов [3]. В области нелегированного циркония присутствует значительно больше водорода в гидридах различной ориентации. Для участка, где трещина не проходит насквозь всю толщину оболочки, в ее

вершине наблюдается длинный гидрид [3]. Следует также отметить, что наличие водородного $g\text{-}$ слоя с гидридами всех возможных ориентаций, включая радиальную, характерно именно для оболочек, подвергнутых скачку мощности [3]. На твэлах с таким же выгоранием, не участвовавших в эксперименте, ни радиально-ориентированных гидридов, ни $g\text{-}$ слоя у внешней поверхности не обнаружено.

В ходе эксперимента на скачок, когда мощность растет, происходит диффузия водорода в более холодные периферийные области под действием температурного градиента и растягивающих механических напряжений. Именно величиной этого напряжения определяется ориентация выделяющихся гидридов. Результаты, приведенные в [2], позволяют предположить, что причиной возникновения начальной (первичной) трещины является разрушение именно такого небольшого радиального гидрида (т.е. фактически водородное охрупчивание внешнего слоя). Затем трещина распространяется шаг за шагом от точки, где остановилась ее вершина по механизму ЗГР. Это предположение было подтверждено в [2] результатами фрактографии и оптическими изображениями поверхности разлома.

Дополнительная информация о механизме ЗГР, может быть получена из результатов эксперимента, моделирующего растрескивание в направлении снаружи внутрь оболочек из сплава Zircaloy-2 твэлов реакторов BWR при скачках мощности [5]. Использовались трубчатые образцы из необлученного наводороженного в диапазоне 180–370 ppm материала с нанесенной наружной усталостной трещиной. Нагружение образцов производилось внутренним давлением, соответствующим окружному растягивающему напряжению 300 МПа. Изучалось поведение трещины при температуре 288°C при наличии градиента температуры ($\sim 65^\circ\text{C}$) и без него. Линейная мощность нагревателя соответствовала 400 Вт/см. Длительность отдельного эксперимента составляла не более 1 ч.

Обнаружено, что при глубине начальной трещины менее 0.1 мм развитие трещины ЗГР не происходит. Также ЗГР не наблюдается в отсутствие градиента температуры. Таким образом, градиент температуры является ключевым фактором обеспечивающим транспорт водорода к вершине трещины. Максимальная полученная средняя скорость ЗГР составляет $30 \cdot 10^{-8}$ м/с, а критический коэффициент интенсивности напряжений в ее вершине – 5 МПа $\text{m}^{1/2}$ [5]. На рис. 8 в работе [5] представлена зависимость скорости трещины ЗГР от температуры и соответствующая зависимость из предыдущей работы тех же авторов [11], где рассматривалось развитие ЗГР при постоянной температуре. Видно, что в изотермическом

случае при температурах выше ~ 573 К (300°C) наблюдается иммунитет материала к ЗГР, т.е. скорость распространения трещины резко падает. В случае наличия градиента температуры такой эффект отсутствует. Таким образом, приведенные в [5, 11] результаты позволяют заключить, что наличие градиента температуры значительно смягчает условия для развития трещины по механизму ЗГР.

В настоящей работе представлены ранее не публиковавшиеся результаты экспериментов, проводившихся в 1990–1992 гг. в исследовательском реакторе МИР (АО “ГНЦ НИИАР”), включавших скачки мощности в твэлах типа ВВЭР с оболочками из сплава Э110. Проанализированы различные возможные механизмы разрушения оболочек при скачках мощности.

1. РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ В РЕАКТОРЕ МИР

В начале 1990-х гг. в АО “ГНЦ НИИАР” (при поддержке АО “ВНИИНМ”) реализовывалась обширная исследовательская программа по изучению поведения в исследовательском реакторе МИР экспериментальных твэлов с разными вариантами топлива и оболочки. Повторное изучение результатов этих работ показало, что некоторые твэлы с оболочками из сплава Э110 в ходе испытаний находились в условиях, характерных для скачков мощности.

Испытания экспериментальных твэлов ВВЭР с различными комбинациями топлива и оболочки проводились в специально изготовленном облучательном устройстве в канале 2–6 петли ПВК-2 реактора МИР в течение 4-х лет для изучения поведения топлива в условиях эксплуатации. Поскольку в соседнем канале 3–7 в это же время проводились эксперименты с топливом другого типа реакторов, в исследуемых твэлах в канале 2–6 также наблюдались два кратковременных быстрых подъема мощности. Т.е. экспериментальные твэлы ВВЭР два раза в течение испытаний находились в условиях скачков. В результате, через три года после начала облучения один из твэлов (№ 92) стал негерметичным, и еще через несколько месяцев разгерметизировались еще два твэла (№ 83 и № 104). Все три твэла были длиной 265 мм и их оболочка была выполнена из циркониевого сплава Э110 со слоем чистого циркония на внутренней поверхности (биметаллическая оболочка). К моменту разрушения расчетное выгорание в твэле № 92 составило 12.6 МВт сут/кгU, а в твэле № 104 – 14.5 МВт сут/кгU.

В ходе эксперимента в канале 2–6 реактор несколько раз выводился на мощность и несколько раз отключался. Рассчитанная в [4] история изменения линейной мощности твэлов №№ 92, 83,

104 для нескольких интервалов времени испытаний представлена на рис. 1 (скачки мощности обозначены R1 и R2).

Из рис. 1 видно, что для скачков R1 и R2 линейная мощность твэлов достигала значений порядка 350–400 Вт/см. Особо следует подчеркнуть, что разгерметизация твэлов произошла через значительное время после скачков мощности R1 и R2, причем за этот период времени более 5 раз произошло включение – выключение реактора (не видно на рис. 1). Облучение твэла № 92 было завершено, когда после очередного более чем месячного простоя реактора при подъеме мощности был обнаружен значительный рост активности теплоносителя. Реактор был сразу же остановлен, и поврежденный твэл был извлечен. При следующем включении реактора твэлы №№ 83 и 104 проработали еще 10 сут (рис. 1), после чего также были извлечены по сигналу датчиков активности контура петли.

Описанный эксперимент проводился в начале 1990-х гг., и в то время не было возможности осуществить качественный контроль водно-химического режима (ВХР) в исследовательской петле реактора. Можно лишь утверждать, что начальные параметры теплоносителя соответствовали ВХР реакторов ВВЭР. В работе [4] приведены расчетные данные по температуре теплоносителя на входе и выходе экспериментального канала 2–6 петли ПВК-2 во время одного из скачков. На разных этапах скачка температура теплоносителя на входе в канал составляла $255\text{--}294^\circ\text{C}$, а на выходе – $278\text{--}324^\circ\text{C}$.

После извлечения из реактора все три разгерметизированных твэла были исследованы в горячих камерах АО “ГНЦ НИИАР”. На одном из них (№ 92) при визуальном осмотре была обнаружена продольная трещина по всей длине (см. рис. 2). Измеренный диаметр твэла составил 9.40–9.70 мм при начальном диаметре 9.19 мм (раскрытие трещины порядка 1–2 мм). Простая оценка показывает, что к моменту образования трещины оболочка испытала пластическую деформацию с максимальной величиной порядка 2%.

Другие два разгерметизированных твэла (№№ 83 и 104) не имели видимых повреждений. Однако при обследовании на герметичность вакуумно-жидкостным методом с отдельных областей их поверхности обнаружено интенсивное выделение пузырьков.

На рис. 3 представлены результаты металлографических исследований оболочки разгерметизированного твэла № 92: два сечения в верхней части твэла, одно – в нижней. На всех фотографиях шлифов наблюдается сетка гидридов, расположенная преимущественно у внешней поверхности оболочки, т.е. обнаружено неравномерное распределение водорода по ее сечению. В

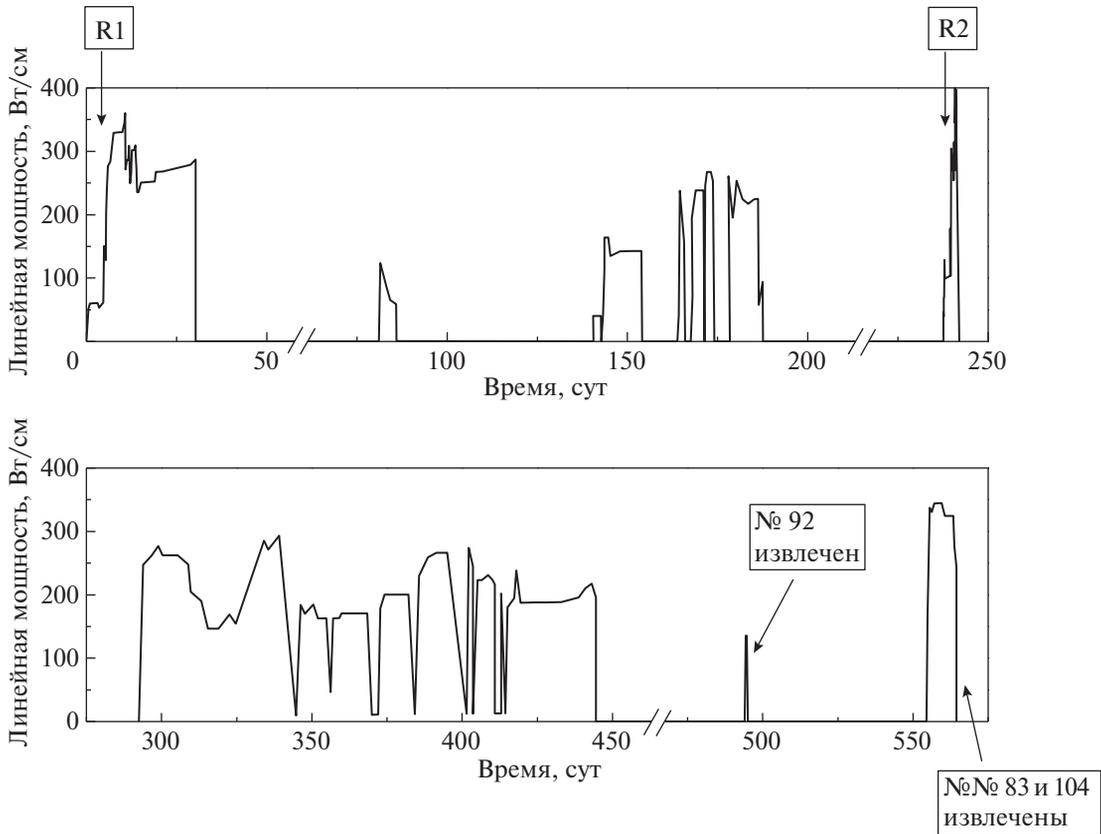


Рис. 1. История изменения линейной мощности экспериментальных твэлов №№ 92, 83, 104 (R1 и R2 – скачки мощности; шкала времени не является непрерывной – в местах обозначенных символами // ряд данных не приведены).

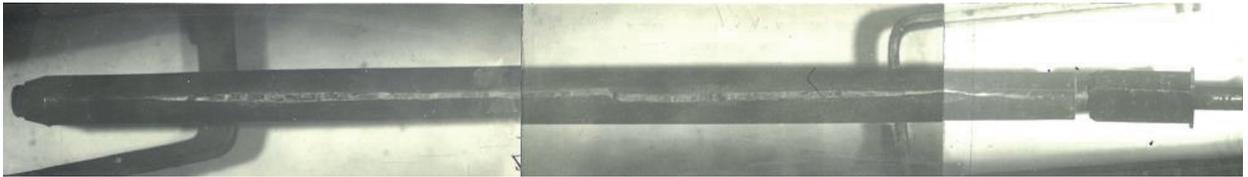


Рис. 2. Внешний вид твэла № 92 (фотография 1993 г.).

верхней части твэла (рис. 3а и 3б) плотность гидридов выше в области трещины по сравнению с остальной частью сечения. В нижней части твэла (рис. 3в) концентрация гидридов примерно одинакова по всему сечению. На высоте, соответствующей рис. 3б, вблизи внешней поверхности твэла наблюдается плотный гидридный Hm -слой. В этом же месте на внутренней поверхности оболочки наблюдается толстая оксидная пленка, что, скорее всего, говорит о вторичной коррозии с внутренней стороны твэла после образования сквозного дефекта и попадания теплоносителя внутрь оболочки.

Толщина равномерной оксидной пленки на внешней поверхности оболочки на высоте соответствующей рис. 3б составляет порядка 30 мкм,

однако, встречаются очаги толщиной до 70 мкм. Поскольку после разгерметизации несколько месяцев твэлы находились в горячем состоянии в бассейне выдержки, возможно, эта пленка также образовалась уже после первичной разгерметизации. Это подтверждается большой толщиной пленки (до 80 мкм) в нижней части твэла на высоте шлифа, представленного на рис. 3в. Другая возможность состоит в том, что на рост такой толстой пленки повлиял теплогидравлический режим, включающий поверхностное кипение теплоносителя. Как следствие, возникло сильное окисление, не характерное для нормальной работы оболочек из сплава Э110 в стандартном режиме ВВЭР при низких выгораниях топлива (12–14 МВт сут./кг U).

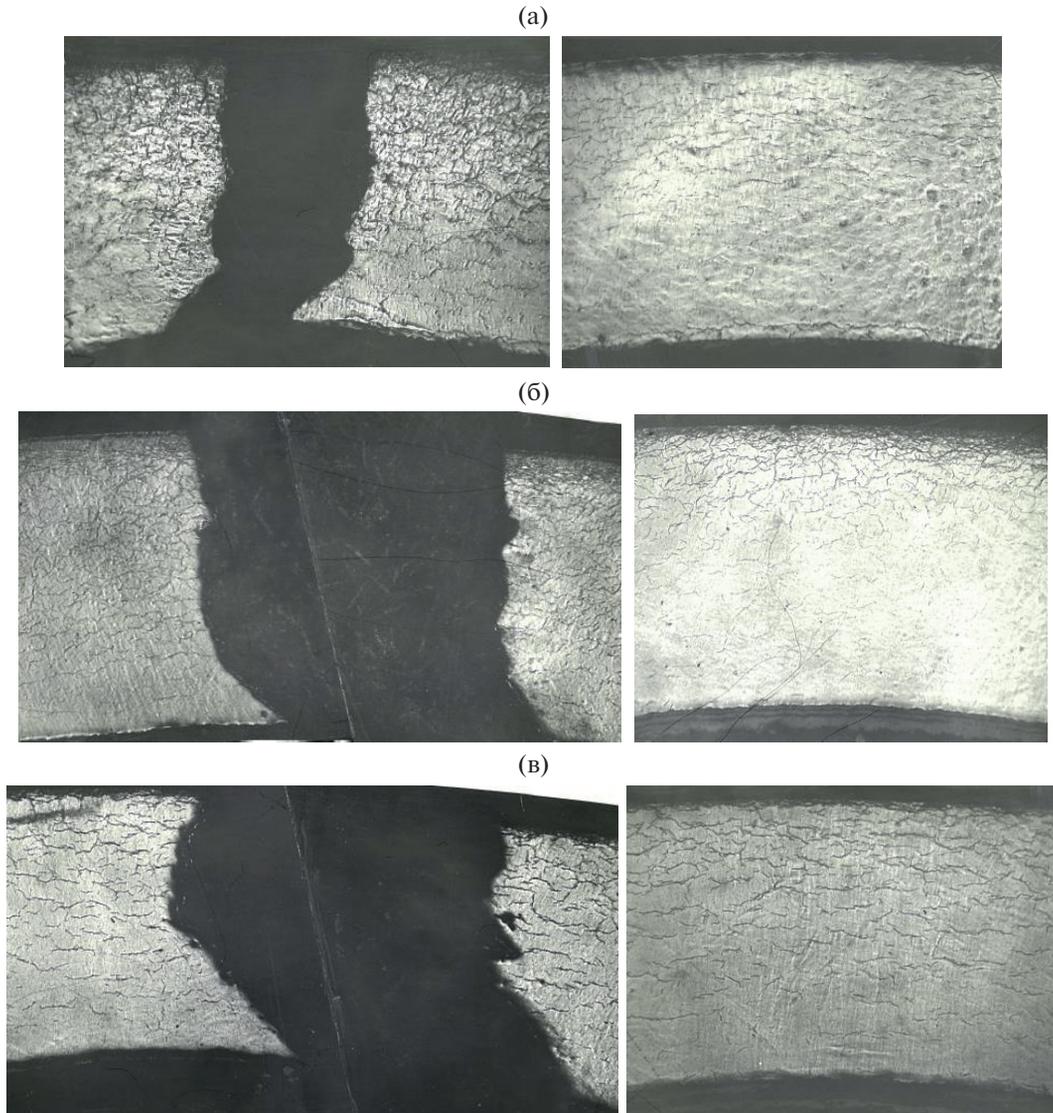


Рис. 3. Результаты металлографии оболочки твэла № 92: (а) и (б) – в верхней части твэла; (в) – в нижней части (фотографии 1993 г.).

Что касается характера разрушения, на всех трех изображениях трещины (рис. 3) отчетливо виден участок, идущий под углом порядка 45° по отношению к радиальному направлению. В верхней части твэла он наблюдается примерно на четверти толщины оболочки, в нижней – на половине. Такой результат говорит о распространении трещины в направлении снаружи – внутрь оболочки, при этом наклонный участок соответствует пластическому разрушению по плоскости максимальных касательных напряжений.

Предположение о направлении развития трещины снаружи внутрь подтверждается результатами металлографии другого сечения в верхней части твэла: наблюдается не прошедшая насквозь трещина с внешней стороны оболочки (см. рис. 4). В районе этой трещины (рис. 4) также наблюдается

разветвленная гидридная сетка и плотный слой гидридов.

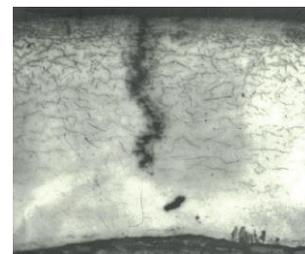


Рис. 4. Результаты металлографии оболочки твэла № 92 в верхней части (фотография 1993 г.).

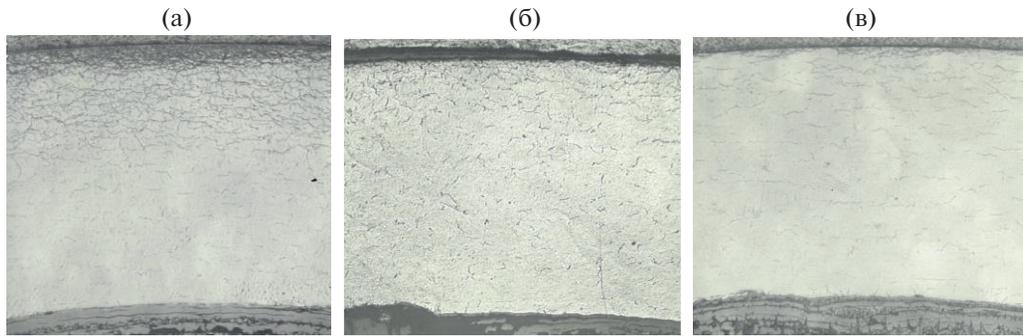


Рис. 5. Результаты металлографии оболочки твэла № 104: (а–в) окрестности дефекта; (б) – выше дефекта; (в) – ниже дефекта (фотографии 1993 г.).

Обнаруженная вакуумно-жидкостным методом негерметичность в верхней части другого твэла (№ 104) при фотографировании внешней поверхности оболочки выглядела как углубление в виде кратера. При проведении послойной металлографии дефект выявить не удалось – сквозной трещины обнаружено не было. Это может говорить о том, что радиальный дефект был снят на очередной стадии шлифовки или заполирован из-за малого поперечного размера.

На рис. 5 приведены несколько фотографий металлографических шлифов твэла № 104 в окрестности сквозного дефекта. Видно, что в целом картина в области, представляющей интерес, имеет сходную структуру с наблюдавшейся при металлографии оболочки твэла № 92. Присутствует достаточно плотная сетка гидридов на внешней половине толщины оболочки, у поверхности обнаружен гидридный *rim*-слой (рис. 5а), также присутствуют гидриды радиального направления. Ниже и выше дефекта по всему сечению оболочки обнаружено равномерное распределение гидридов с преимущественно тангенциальной ориентацией (рис. 5б и 5в).

Оксидная пленка на внешней стороне оболочки имеет переменную толщину. В области максимальной толщины пленки (30 мкм) распределение гидридов по сечению равномерное, их ориентация тангенциальная. На внутренней стороне оболочки наблюдается толстая (до 40 мкм) частично фрагментированная оксидная пленка. В окрестности дефекта, где максимальна концентрация гидридов (судя по плотности гидридной сетки), и обнаружен гидридный *rim*-слой (рис. 5а), на внутренней поверхности оболочки толщина оксидной пленки составляет до 100 мкм, пленка расслоена.

Необходимо отметить, что приведенные результаты по оксидной пленке на внутренней поверхности оболочки следует рассматривать с осторожностью, из-за низкого качества фотографий, выполненных в 1993 г.

Что касается твэла № 83 при его обследовании обнаружена ситуация, полностью аналогичная твэлу № 104 – дефект не выявлен.

2. МЕХАНИЗМЫ РАЗГЕРМЕТИЗАЦИИ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ

В топливе тепловых реакторов на начальных этапах (первые несколько лет) эксплуатации между оболочкой и таблеткой есть зазор и поэтому напряженное состояние оболочки связано только со сжимающими нагрузками со стороны теплоносителя и давлением газа в объеме твэла. При больших выгораниях (примерно после 3-х лет эксплуатации) таблетки распухают и не только заполняют имевшийся ранее зазор, но и оказывают давление на оболочку с внутренней стороны. При скачке (резком увеличении линейной мощности твэла до значений 400 Вт/см и выше) происходит растрескивание топливной таблетки, и как следствие, выход газообразных продуктов деления в объем твэла. Это сопровождается возникновением дополнительного давления изнутри, как из-за газа, так и из-за непосредственного контакта. Возникающие при этом в оболочке окружные растягивающие напряжения имеют максимальное значение напротив таблеток с максимальным распуханием в областях, расположенных около торца таблетки. Для дальнейшего необходимо также отметить, что в ходе эксплуатации в оболочках из сплава Э110 присутствует градиент температуры порядка 40°C на всю толщину, а в оболочках из Циркалоя-2 до ~60°C (см. введение).

Поскольку повреждение оболочек при скачках мощности в реакторе характерно для топлива большого выгорания, необходимо учитывать, что в этом случае оболочка содержит некоторое (зависящее от сплава) количество водорода, поглощенного в ходе ее коррозии в теплоносителе. Распределение водорода по толщине оболочки неоднородно, во-первых, из-за наличия градиента температуры, а во-вторых, из-за поглощения во-

дорода только с одной стороны – на внешней поверхности оболочки. Для биметаллических оболочек, на внутренней стороне которых нанесен тонкий слой нелегированного циркония (это характерно, например, для оболочек из Циркалоя-2 для реакторов BWR) дополнительный вклад в неравномерность распределения водорода вносит тот факт, что сплав и нелегированный цирконий в разной степени склонны к поглощению водорода. Все эти особенности гидрирования хорошо видны на металлографических шлифах образцов от оболочек твэлов после экспериментов на скачки мощности.

Таким образом, в оболочке присутствует водород, и в условиях скачка есть две движущие силы для его диффузии в направлении от внутренней поверхности оболочки к внешней: температурный градиент и поле напряжений, поскольку известно, что водород диффундирует в сторону уменьшения температуры и увеличения растягивающих окружных напряжений. Кроме того, если на внешней поверхности присутствует тем или иным способом созданная начальная микротрещина радиального направления, то в окрестности ее вершины есть область достаточно высоких растягивающих напряжений и пластическая зона, характерный размер которой определяется свойствами материала. Эта область также является “притягивающей” для водорода, диффундирующего по объему материала оболочки. Т.е. могут возникнуть условия, при которых водород перераспределяется таким образом, что в вершине трещин образуются гидриды, что фактически и наблюдается.

Анализ научной литературы показал, что к настоящему моменту обнаружено всего три механизма, которые могли бы привести к разгерметизации оболочки твэла при скачках мощности. Это коррозионное растрескивание под напряжением (КРН), замедленное гидридное растрескивание (ЗГР) и водородное охрупчивание, связанное со снижением прочности и пластичности материала при образовании гидридов (особенно радиально-ориентированных).

Остановимся более подробно на их особенностях.

При скачке мощности происходит растрескивание таблеток и интенсивный выход из них продуктов деления, в том числе, химически активных, например, цезия, йода, теллура и др. Кроме того, в оболочке присутствуют растягивающие окружные напряжения, поэтому в окрестности дефектов (царапин) на ее внутренней поверхности коэффициент интенсивности напряжений может достигнуть достаточно высоких значений. В таких условиях возможно развитие механизма коррозионного растрескивания под напряжением (КРН) [6–8]. При этом с внутренней стороны оболочки прорастает трещина в ходе химической

коррозии по границам зерен. Если трещина прошла насквозь, то на поверхности наблюдается небольшой кратеро-образный дефект типа “pin-hole”. В случае образования такого дефекта на металлографии наблюдается характерный вид ветвистой трещины в направлении изнутри наружу, а на фрактографии явно прослеживается зеренная структура поверхности трещины.

Как показано выше, такого рода дефект был обнаружен на одном твэле в экспериментах на скачок мощности японских исследователей [2, 3]. Также с подавляющей вероятностью вследствие подобного дефекта разгерметизировались твэлы № 104 и № 83 в ходе описанных выше экспериментов со скачками мощности в реакторе МИР. Учитывая характер повреждения при развитии дефекта по механизму КРН очевидно, следует заключить, что с его помощью невозможно объяснить растрескивание оболочки путем распространения длинной продольной трещины.

Другой возможный механизм – водородное охрупчивание связано с образованием плотной гидридной сетки. Коррозия в среде теплоносителя сопровождается насыщением материала оболочки водородом. Когда концентрация водорода превысит предел растворимости, начинают образовываться пластины гидридов циркония (δ -фаза). Удельный объем гидридов на 17% выше, чем у матрицы, поэтому их образование сопровождается возникновением дополнительных внутренних напряжений и деформаций в материале. Прочность и пластичность гидрида заметно отличается от соответствующих характеристик матрицы. Например, при комнатной температуре прочность гидрида значительно ниже, чем у матрицы, а пластичность практически нулевая (гидрид циркония хрупкий) [10]. Поэтому если образовалось «достаточное» количество гидридов, они могут повлиять на механические свойства материала в целом.

Кроме количества гидридов, важным фактором является их ориентация. Различают два типа ориентации: преимущественно тангенциальную (параллельно поверхности трубы) и преимущественно радиальную (перпендикулярно поверхности). Производство трубного проката для оболочек твэлов позволяет получать материал с такой текстурой, что гидриды в нем ориентируются преимущественно в тангенциальном направлении. При такой ориентации растягивающие (сжимающие) окружные напряжения (при которых, в основном, и работает оболочка), не приводят к заметному ухудшению механических свойств из-за наличия гидридов.

Результаты для зависимости прочности и пластичности оболочек твэлов из Циркалоя-4 от концентрации водорода получены в [12]. Фрактография поверхности разрыва образцов, испытанных при комнатной температуре, показала [12],

что для случая тангенциальных гидридов в местах, где находились гидриды, образовались крупные вытянутые первичные поры, которые привели к изменению направления распространения трещины и к затуплению ее вершины. Таким образом, тангенциальные гидриды слабо меняют механические свойства материала. Другая ситуация складывается при наличии радиально-ориентированных гидридов. В случае, если радиальных гидридов много и они распределены по всему сечению, прочность всего материала определяется именно ими. Результаты механических испытаний [12] показали заметное снижение пластичности этих образцов по сравнению с образцами с тангенциально ориентированными гидридами.

В работе [13] изучена зависимость механических свойств необлученных оболочек из сплава Циркалой-4 при комнатной температуре и различном содержании водорода. Из результатов испытаний материала в поперечном направлении следует, что при концентрации водорода 130 ppm общее относительное удлинение δ падает ниже 2% уже при доле радиально-ориентированных гидридов $F_n \sim 40\%$ и достигает значения $\delta \sim 1\%$ при $F_n \sim 100\%$. Для более высокой концентрации водорода (250 ppm) при $F_n \sim 100\%$ уже наблюдается нулевая пластичность ($\delta = 0\%$). С ростом концентрации водорода материал теряет пластичность при более низком значении доли радиально-ориентированных гидридов ($F_n \sim 80\%$ при 320 ppm; $F_n \sim 20\%$ при 600 ppm) [13]. Таким образом, эксперименты [12, 13] показали значительное ухудшение механических свойств материала при увеличении доли радиально-ориентированных гидридов.

Влияние радиальных гидридов на механические свойства материала усугубляется при неравномерном распределении водорода по толщине стенки оболочки (например, при формировании гидридного *rim*-слоя). Локальная концентрация водорода в *rim*-слое составляет порядка ~ 1000 – 10000 ppm, поэтому всегда, присутствует достаточное число, как тангенциальных, так и радиальных гидридов, а сами пластины достаточно близко друг к другу расположены [14]. Поэтому при скачке мощности из-за растягивающих тангенциальных напряжений значительной величины радиальные гидриды *rim*-слоя могут растрескиваться. В частности, в работе [15] показано, что в оболочках из сплава Циркалой-4 со средним содержанием водорода 500 ppm при наличии гидридного *rim*-слоя пластичность внешних слоев оболочки примерно в 2 раза ниже, чем при равномерном распределении гидридов.

Из вышесказанного следует, что механизм водородного охрупчивания, связанный с образованием во внешнем слое оболочки радиально-ори-

ентированных гидридов может быть ответственен за образования начальных продольных трещин на оболочке твэла при скачках мощности. Если распределение водорода в толще оболочки такое, как изображено на рис. 3б и 5а, первичные трещины будут расположены около внешней поверхности оболочки и будут иметь небольшую глубину, поскольку в более глубоких слоях концентрация водорода ниже. Кроме того, при температурах оболочки твэла в экспериментах, описанных выше (порядка 260–290°C) во внутренней части поперечного сечения весь водород находится в твердом растворе, поскольку там его мало, и следовательно, пластичность материала определяется матрицей. Гипотеза о том, что возникновение начальных продольных микротрещин небольшой глубины происходит у внешней поверхности оболочки, была непосредственно экспериментально подтверждена в работе [16]. Так при модельных экспериментах на образцах от оболочек BWR из сплава Циркалой-2 с большим выгоранием было обнаружено, что появление микротрещин во внешнем, наиболее гидрированном слое оболочки происходит при напряжениях 300–400 МПа [16].

Таким образом, механизм водородного охрупчивания позволяет описать появление начальных трещин на внешней поверхности оболочки, но не дает возможности объяснить сквозное распространение длинных продольных трещин при имеющихся концентрациях водорода. Возможным кандидатом для объяснения этого эффекта является другой водородный механизм – замедленное гидридное растрескивание [10, 17].

В случае ЗГР, сначала на внешней стороне оболочки, растянутой внутренним давлением, при превышении критического напряжения образуется поверхностная микротрещина радиального направления (например, в месте расположения радиально-ориентированного гидрида достаточного размера, либо в месте концентрации напряжений из-за другого протяженного дефекта или царапины). В окрестности вершины микротрещины имеется область с достаточно высокими растягивающими напряжениями. Поэтому, если температура не слишком низкая, водород диффундирует из объема материала оболочки в эту область и образует там гидрид. Если растягивающее тангенциальное напряжение в оболочке, например, вызванное давлением таблетки при скачке мощности, достаточно велико, гидрид может треснуть и трещина раскрывается по этому гидриду. Далее процесс повторяется снова и снова. Скорость ЗГР определяется самым медленным процессом в системе – диффузией водорода, поэтому растрескивание по этому механизму происходит значительно медленнее, по сравнению с распространением обычной хрупкой трещины.

Таблица 1. Основные параметры ЗГР в сплавах Э110опт, Э635М и Циркалой-4 [17]

Сплав	Э110опт	Э635М	Циркалой-4
Температура иммунитета, °С	260	285	305
K_{IH} , МПа · м ^{1/2}	11	7	5

Если трещина ЗГР распространяется в оболочке с параметрами, описанными выше, в какой-то точке она достигает области пластичного материала. Далее разрушение будет распространяться по плоскости максимальных касательных напряжений, т.е. под углом порядка 45° к радиальному направлению (что фактически и наблюдается на рис. 3).

Основными параметрами, влияющими на скорость распространения трещины ЗГР, являются температура и напряжения в вершине трещины (коэффициент интенсивности напряжений K_I). При напряжениях, ниже порогового K_{IH} , трещина не движется. В диапазоне $K_{IH} < K_I < K_{IC}$ трещина ЗГР распространяется с приблизительно одинаковой скоростью $v_{ЗГР}$. При достижении значения K_{IC} происходит быстрое разрушение образца. Зависимость от температуры носит более сложный характер: для каждого сплава есть так называемая “температура иммунитета к ЗГР”, выше которой распространению трещины ЗГР не наблюдается. Возможной причиной такого характера указанной зависимости [10] является то, что при температурах выше температуры иммунитета большая часть водорода переходит в твердый раствор, а материал матрицы становится более пластичным, при этом в окрестности вершины трещины происходит значительная пластическая деформация и ее вершина затупляется. Кроме того, на скорость распространения трещины могут влиять направление ее распространения (зависящее от ориентации первичного дефекта) и текстура материала. В частности, в работе [18] показано, что скорости распространения трещины в поперечном и продольном направлении (для оболочки) и скорости в трубах с разной текстурой могут отличаться в несколько раз.

Таким образом, чтобы оценить возможность реализации механизма ЗГР в оболочке твэла необходимо знать для ее материала: пороговый коэффициент интенсивности напряжений K_{IH} ; скорость стабильного роста трещины ЗГР $v_{ЗГР}$ и характер зависимости скорости от температуры (включая температуру иммунитета).

Остановимся на ряде экспериментальных результатов исследования ЗГР в различных циркониевых сплавах. В работе [17] проведены эксперименты по измерению параметров ЗГР необлученных сплавов Э110опт, Э635М и Циркалой-4 (отечественного производства) при фиксирован-

ной температуре. Основные результаты представлены в табл. 1 и на рис. 6.

Из рис. 6 следует, что для сплавов Э110опт и Э635М зависимости скорости от температуры и критические величины K_{IH} значительно отличаются, а данные для Циркалой-4 совпадают в пределах погрешности с результатами, полученными на образцах из Э635М. Максимальная скорость распространения трещины ЗГР для сплава Э110опт составляет порядка $0.7 \cdot 10^{-8}$ м/с, а для сплавов Циркалой-4 и Э635 – $(8-10) \cdot 10^{-8}$ м/с. Для сравнения, приведенная в работе [5] максимальная скорость трещины ЗГР в Цирклом-2 при однородном распределении температуры также составляет порядка $10 \cdot 10^{-8}$ м/с.

Таким образом, ЗГР является наиболее подходящим кандидатом в качестве механизма распространения длинной продольной трещины на оболочке твэла при скачке мощности. К этому выводу также пришли авторы [2, 3], изучавшие поведение при скачках отработавших оболочек твэлов BWR из сплава Циркалой-2.

Для проведения количественных оценок результатов экспериментов, описанных в разделе 1, рассмотрим фотографию металлографического шлифа оболочки твэла с трещиной, приведенную на рис. 3б. Во внешней части сечения оболочки присутствует плотный гидридный слой (толщиной порядка 40 мкм), в котором под действием растягивающего напряжения соответствующей величины могла появиться микротрещина по механизму водородного охрупчивания. Длина этой микротрещины порядка толщины исходного гидридного *rim*-слоя, т.е. ~40 мкм. Далее, поскольку в объеме материала оболочки присутствует водород (наблюдается высокая плотность гидридов во внешней половине сечения), под действием напряжений и температурного градиента водород мог диффундировать к вершине микротрещины и способствовать ее распространению по механизму ЗГР. Для этого необходимо, чтобы коэффициент интенсивности напряжений достиг величины $>K_{IH} \sim 11$ МПа м^{1/2} (см. табл. 1).

Глубина трещины от внутренней поверхности гидридного *rim*-слоя до места изменения направления ее распространения (под углом 45° к радиальному направлению), согласно рис. 3б, составляет $d \sim 0.4$ мм. Предположим, что параметры ЗГР для сплавов Э110 и Э110опт схожи. Тогда в диапазоне температур 150–250°С, где водород еще доста-

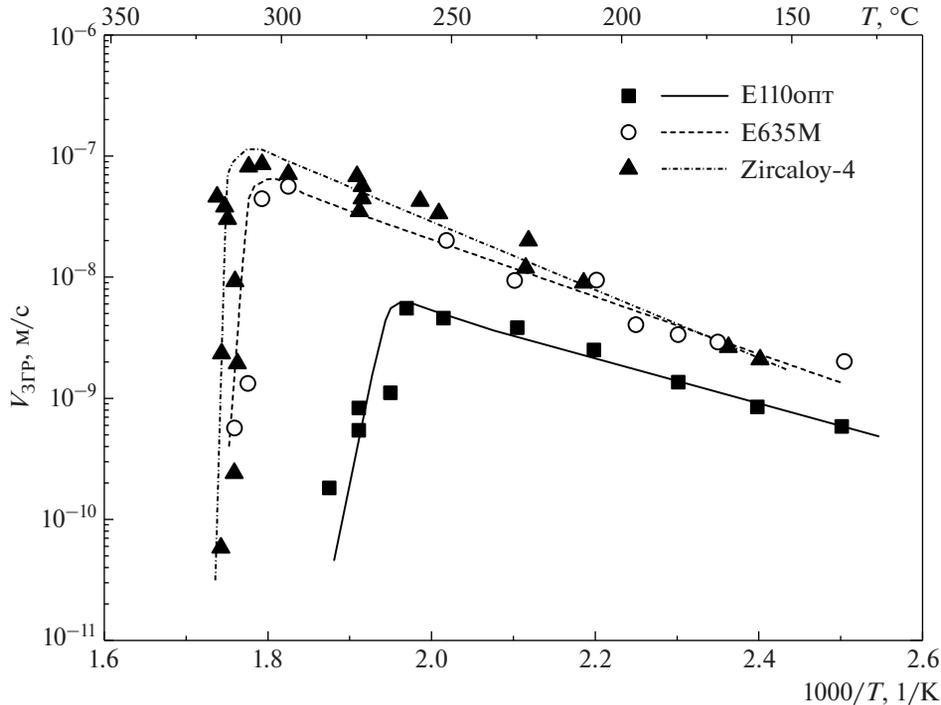


Рис. 6. Зависимость скорости распространения трещины ЗГР от температуры [17].

точно подвижен, скорость распространения трещины ЗГР в сплаве Э110 составляет $(1-5) \cdot 10^{-9}$ м/с (рис. 6). Однако, из-за градиента температуры по сечению оболочки скорость может быть на порядок выше, поэтому для оценки примем $v_{ЗГР} \sim (1-5) \cdot 10^{-8}$ м/с. Тогда время распространения трещины ЗГР составит порядка 200–600 мин. Меньшее из приведенных значений (200 мин) по порядку величины совпадает с полученным в работе [15] временем распространения трещины ЗГР в оболочках твэлов ВВР из сплава Циркалой-2 (112 мин при температуре 250°C, и напряжении 400 МПа).

Принципиальное отличие результатов экспериментов на скачок мощности в реакторе JMTR [2, 3] от испытаний твэлов в реакторе МИР, результаты которых приведены в настоящей работе, состоит в различном времени развития длинных продольных трещин на оболочках. В первом случае сквозные трещины образовались уже за несколько часов (максимальное время до разрушения 149 мин). А во втором случае эксперимент в реакторе МИР продолжался в течение нескольких месяцев после скачка R1, и за это время реактор выводился на мощность и глушился несколько раз. Качественно подобный результат может быть объяснен следующим образом. Для сплава Циркалой-2 температура иммунитета к ЗГР составляет порядка 250–280°C [18]. Тогда, возможно, сразу после скачка мощности в реакторе JMTR [2, 3] температура оболочек была именно в этом диа-

пазоне (в котором максимальна скорость ЗГР), и поэтому разрушение наблюдалось уже в ходе эксперимента. А эксперименты в реакторе МИР проводились примерно в том же диапазоне температур, но для сплава Э110 эти температуры превышают температуру иммунитета к ЗГР (рис. 6). Поэтому распространение трещин ЗГР в оболочках из Э110 могли происходить только при расхолаживании экспериментального канала между кампаниями реактора. Т.е. для развития сквозного дефекта оболочки понадобилось несколько “шагов” ЗГР с температурами в диапазоне 150–250°C, поскольку один шаг, сопровождающий одно расхолаживание, происходил достаточно быстро, и трещина ЗГР просто не успевала дорости до критической длины.

Однако, следует подчеркнуть, что приведенный выше анализ основан на свойствах необлученного материала оболочки в отсутствие градиента температуры (в частности, на результатах, представленных на рис. 6). А реальные параметры, характеризующие свойства материала в условиях облучения, вследствие радиационного упрочнения существенным образом отличаются от соответствующих величин в необлученных оболочках. Кроме того, при эксплуатации оболочки в ней есть градиент температуры.

Влияние облучения на распространение трещин ЗГР в трубах давления из Циркалой-2 различных производителей (разная текстура) до и после облучения до флюенса $7.7 \cdot 10^{21}$ нейтр./см²

изучено в работе [19]. Сравнение соответствующих зависимостей скорости ЗГР от коэффициента интенсивности напряжений показало, что: а) с ростом температуры наблюдается рост критической величины K_{IH} и максимальной скорости роста трещины при больших значениях K_I ; б) максимальная скорость ЗГР на порядок выше в облученных материалах; в) максимальная зарегистрированная скорость трещины ЗГР составила $4 \cdot 10^{-8}$ м/с (рис. 13 в работе [19]).

Однако, есть еще один возможный механизм разгерметизации оболочки твэла № 92 в ходе описанного выше эксперимента в реакторе МИР. Известно [20], что в оболочке, находящейся под действием внутреннего давления, растягивающее тангенциальное напряжение меняется по толщине стенки. Оно максимально на внутренней стенке и спадает в радиальном направлении по закону $1/r^2$ (при идеальной цилиндрической симметрии). Кроме того, в локальных областях оболочки напряжение может значительно превышать среднее значение из-за близости наиболее деформируемой при скачке области вблизи стыка соседних таблеток или в окрестности краев кусков (крошек) растрескавшихся таблеток. Поэтому может возникнуть ситуация, когда прочность внешней сильно гидрированной части сечения оболочки будет значительно ниже прочности ее внутренней части. Если по мере увеличения растягивающих напряжений прочность внешней части окажется меньшей их величины, то произойдет распространение по ней хрупкой трещины, т.е. водородное охрупчивание. Дойдя до более прочных слоев, механические свойства которых не связаны с гидридами, а целиком определяются радиационным упрочнением материала, трещина либо остановится, если оставшееся сечение выдержит приложенную нагрузку, либо продолжит свое движение, но уже в ходе обычного пластического разрушения материала. При этом произойдет изменение направления распространения трещины.

Необходимо кратко обсудить еще один аспект, незатронутый ранее — роль водно-химического режима реактора. Так из эксплуатационных данных известно, что все разгерметизации твэлов реакторов ВВЭР (PWR), возникающие в ходе непреднамеренных скачков мощности, происходят по механизму КРН. А в кипящих реакторах ВВЭР возможно образование продольных длинных трещин [2, 3]. В ходе описанного в разделе 1 эксперимента в реакторе МИР также наблюдалось частичное кипение теплоносителя, и также была обнаружена длинная продольная трещина на одном из твэлов. Принципиальное отличие этих двух случаев состоит в следующем. В реакторах с водой под давлением (ВВЭР, PWR) основными добавками к теплоносителю являются борная кислота, а также LiOH в PWR, либо KOH, NH₃, NaOH в ВВЭР. В результате концентрация водо-

рода (H₂) в теплоносителе значительно (более чем 200 раз) превосходит концентрацию кислорода (O₂). В кипящих реакторах ситуация обратная — химически-активных добавок нет, а концентрация кислорода (O₂) и кислородосодержащих ионов (HO₂, H₂O₂, OH) значительно выше чем водорода (H₂). Таким образом, водно-химические режимы этих двух типов реакторов существенно различаются. Следовательно, в них как характер окисления оболочек так и характер наводороживания имеют свои особенности. Поскольку, как было показано выше, для разрушения оболочек твэлов путем распространения длинных трещин ключевым фактором является наличие водорода, остается вопрос, как водно-химический режим связан с поглощением оболочечным сплавом водорода, как в целом, так и на поверхности образующейся трещины. В настоящий момент есть ряд работ, в которых предполагается, что в условиях кипящего теплоносителя водород может проникать в оболочку в окрестности вновь образующейся поверхности трещины непосредственно из газовой фазы пузырьков пара. Однако, эти работы носят спекулятивный характер и имеющиеся результаты не позволяют считать такой механизм доказанным.

Таким образом, на данный момент не представляется возможным однозначно выбрать механизм, ответственный за образование длинных продольных трещин на оболочках твэлов при скачках мощности в рассматриваемом эксперименте в реакторе МИР. Наиболее обосновано, подобное сделано для оболочек из сплава Циркалой-2 в реакторе ВВЭР в работах [2, 3], хотя в свете описанных выше проблем, требуется уточнение ряда важных аспектов. В любом случае, имеющихся на настоящий момент данных недостаточно, необходимо проведение дополнительных реакторных и лабораторных экспериментов, а также работ по моделированию рассматриваемых процессов. Тем не менее, уже сейчас можно сказать с уверенностью, что ключевыми факторами, влияющими на образование длинных продольных трещин на оболочках при скачках мощности, являются гидридное охрупчивание и радиационное упрочнение материала под облучением.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. В работе представлены ранее не публиковавшиеся результаты послереакторных исследований экспериментальных твэлов, испытанных в реакторе МИР в условиях скачков мощности. Показано, что при разгерметизации одного из твэлов путем распространения продольной трещины максимальная пластическая деформация оболочки перед возникновением трещины составляла порядка 2%.

2. Проанализированы результаты испытаний на скачки мощности в японском реакторе JMTR и результаты модельных экспериментов. Показано, что характер разрушения оболочек BWR из сплава Циркалой-2 идентичен характеру разрушения одной из оболочек из сплава Э110 при экспериментах в реакторе МИР.

3. Рассмотрены основные особенности возможных механизмов развития трещин в оболочках твэлов при скачках мощности: коррозионного растрескивания под напряжением, водородного охрупчивания и замедленного гидридного растрескивания.

4. Выдвинут ряд гипотез относительно механизма разрушения оболочки одного из твэлов в ходе эксперимента в реакторе МИР. Наиболее правдоподобными механизмами являются: 1) водородное охрупчивание внешней части оболочки и 2) водородное охрупчивание приповерхностного гн-слоя, за которым следует замедленное гидридное растрескивание.

5. Анализ имеющихся результатов показал, что к настоящему времени не достаточно данных для точного установления механизма развития длинной продольной трещины на оболочках из сплава Э110, наблюдавшегося в экспериментах в реакторе МИР. Только проведение дополнительных реакторных и лабораторных модельных экспериментов с облученными и необлученными материалами может пролить свет на рассматриваемую проблему.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Sakurai H., Wakashima Y. et al. // Proc. Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance. P. 515.
2. Shimada S. et al. // J. Nucl. Mater. 2004. V. 327. P. 97.
3. Hayashi H., Ogata K., Baba T., Kamimura K. // J. Nucl. Sci. Technol. 2006. V. 43. P. 1128.
4. Novikov V.V., Bibilashvili Yu.K., Mikheev E.N. et al. // At. Energy. 2008. V. 105 (4). P. 262.
5. Sakamoto K., Nakatsuka M., Higuchi T. // J. ASTM Int. 2010. V. 7 (6). P. JAI102938. <https://doi.org/10.1520/JAI102938>
6. Cox B. Report AECL-3551. 1970. Chalk River: Atomic Energy of Canada Limited.
7. Park S.U. et al. // J. Nucl. Mater. 2008. V. 372. P. 293.
8. Novikov V.V. // At. Energy. 1991. V. 71. P. 557.
9. Motta A.T. et al. // J. Nucl. Mater. 2019. V. 518. P. 440.
10. Puls M.P. The Effect of Hydrogen and Hydrides on the Integrity of Zirconium Alloy Components. Delayed Hydride Cracking. 2012. London: Springer-Verlag.
11. Sakamoto K., Nakatsuka M., Higuchi T. // Proc. Water Reactor Fuel Performance Meeting (WRFPM2008). 2008. Seoul, South Korea.
12. Raynaud P.A., Koss D.A., Motta A.T. // J. Nucl. Mater. 2012. V. 420. P. 69.
13. Chu H.C., et al. // J. Nucl. Mater. 2007. V. 362. P. 93.
14. Alvarez-Holston A-M., Lysell J., Grigoriev V. // Proc. LWR Fuel Performance Meeting. 2007. San Francisco, CA, USA. P. 1080.
15. Min S.-J., Kim M.-S., Kim K.-T. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 441. P. 306.
16. Yagnik S.K., Chen J-H., Kuo R-C. // Proc. 17th Int. Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry.
17. Markelov V.A., Gusev A.Yu., Saburov N.S. et al. // Deform. Razrush. Mater. 2012. V. 11. P. 42 (in Russian).
18. Kubo T., Kobatashi Y., Uchikoshi H. // J. Nucl. Mater. 2012. V. 427. P. 18.
19. Huang F.H., Mills W.J. // Metall. Trans. A. 1991. V. 22. P. 2049.
20. Timoshenko S.P., Goodier J.N. Theory of Elasticity. 2010. India: McGraw-Hill Education.

Mechanisms of the Cladding Tubes Axial Cracking in Power Ramp Tests

V. V. Novikov¹ and A. A. Plyasov^{1, *}

¹SC Bochvar High-Tech Research Institute of Inorganic Materials (VNIINM), Moscow, 123060 Russia

*e-mail: alex_plyasov@mail.ru

Received September 20, 2022; revised September 27, 2022; accepted September 27, 2022

Abstract—In the early 1990th the research program to investigate experimental fuel rods with different fuel compositions and claddings in the research reactor MIR was carried out by JSC “SSC Research Institute of Atomic Reactors” and JSC “VNIINM”. Reexamination of the program reports containing results of post-irradiation tests allows ascertaining that some rods with the zirconium alloy E110 cladding tubes were subjected to the power ramp conditions. As a result some rods failed, but one of them demonstrated axial cracking from one end to the other. Unpublished results of the damaged fuel rods inspection are presented here. Different mechanisms of the cladding tubes axial cracking have been analyzed. It is shown that the key factors for axial cracking of claddings after power ramps are hydrogen embrittlement and radiation hardening of a material. However, to the moment it is not enough information to exactly select which mechanism of cladding failure was realized.

Keywords: power ramp, fuel cladding, zirconium alloy, E110, longitudinal crack, mechanisms of embrittlement, hydrogen embrittlement, delayed hydride cracking