

ВЛИЯНИЕ ВОДОРОДА НА СОПРОТИВЛЕНИЕ ОБОЛОЧЕК ИЗ СПЛАВА Zr-1%Nb МАЛОЦИКЛОВОЙ УСТАЛОСТИ

*С.П. Клименко, Т.П. Черняева, В.М. Грицина, И.А. Петельгузов,
Е.А. Слабоспицкая, А.П. Редкина*

*Научно-технический комплекс «Ядерный топливный цикл»
ННЦ «Харьковский физико-технический институт», Харьков, Украина
E-mail: klimenko@kipt.kharkov.ua*

При работе в водном теплоносителе циркониевые оболочки твэлов поглощают часть водорода, образующегося при их окислении. Накопленный за время эксплуатации водород способен повлиять на усталостную прочность циркониевых оболочек. На образцах шириной 3 мм, вырезанных из оболочечных труб Zr-1%Nb (\varnothing 9,13 мм, толщиной стенки 0,68 мм) в состоянии поставки (финальный отжиг 580 °С в течение 3 ч, рекристаллизованное состояние), а также на образцах, вырезанных из отрезков труб, гидрированных в газообразном водороде, образующемся при диссоциации TiH_2 , проведены испытания на малоцикловую усталость. Содержание водорода в гидрированных образцах – 200 и 500 ppm; температура усталостных испытаний – 350 °С, частота колебаний – 0,2 Гц, амплитуда деформации – $10^{-3} \dots 10^{-2}$. По результатам проведенных испытаний построены кривые усталости для негидрированных и гидрированных образцов Zr-1%Nb. Установлено, что при температуре 350 °С усталостная прочность гидрированных образцов слегка выше, это может быть обусловлено тем, что та часть водорода, которая находится в твердом растворе, повышает пластичность циркония и циркониевых сплавов.

ВВЕДЕНИЕ

Сплав Zr-1%Nb уже много лет используется в качестве материала оболочек твэлов ТВС реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000. При работе в реакторе оболочки твэлов подвержены многообразным силовым воздействиям, включающим: вибрационные нагрузки; силы, возникающие при установке; внутреннее давление газообразных продуктов деления; вес топливного сердечника; давление распухающего топлива; термические напряжения в оболочке; силу трения топлива и оболочки; давление потока теплоносителя [1]. Исходя из функционального назначения (защита ядерного топлива от контакта с теплоносителем) и опасности последствий разгерметизации твэлов, к оболочкам предъявляется ряд требований, в том числе и требования к усталостной прочности – прочностной критерий SC4 (усталостная и длительная прочность оболочки) [1]. При работе в реакторе в циркониевых оболочках твэлов происходит накопление водорода. В основных требованиях к обоснованию прочности и термомеханического поведения ТВС и твэлов в активной зоне реакторов ВВЭР [2] отмечается, что в качестве критериев прочности и работоспособности твэлов должны использоваться следующие предельные состояния:

а) пороговое значение первого главного напряжения в оболочке твэла, непревышение которого исключает страгивание исходной трещины, размеры которой устанавливаются разработчиком конструкции твэла;

б) потеря устойчивости оболочки твэла (как мгновенная, так и длительная при прогрессирующем исходной овалности за счет ползучести) под воздействием давления теплоносителя;

в) предельное значение повреждения металла оболочки твэла за счет циклически повторяющихся нагрузок;

г) предельное значение повреждения металла оболочки твэла за счет терморadiационной ползучести;

д) предельная величина общих изгибных напряжений (или изгибных деформаций) в оболочках твэлов при сейсмических или иных динамических воздействиях;

е) предельное значение интенсивности пластической деформации оболочки твэла;

ж) предельное значение изменения диаметра оболочки твэла;

з) предельное значение удлинения твэла;

и) температура плавления топлива (для определенных проектом химического состава, выгорания и технологии изготовления);

к) предельное значение давления газов под оболочкой твэла;

л) предельная толщина окисной пленки на наружной поверхности оболочки твэла;

м) предельное содержание водорода в оболочке твэла, при превышении которого происходит недопустимое охрупчивание металла оболочки.

Численные значения критериев прочности и работоспособности твэлов по указанным предельным состояниям должны быть определены и обоснованы разработчиками проектов твэла и ТВС на основе экспериментов и/или расчетов. Указанные значения должны обосновываться в проекте РУ и приводиться в ООБ АС.

Мы сочли целесообразным привести требования к ТВС и твэлам, чтобы подчеркнуть, что два из них (в и м) имеют непосредственное отношение к проводимому нами циклу исследований по влиянию водорода на усталостную прочность твэльных труб Zr-1%Nb.

1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА ИСПЫТАНИЙ

Исследования проведены на штатных твэльных трубах с внешним диаметром 9,13 мм и толщиной стенки 0,68 мм.

Образцы для испытаний на усталость представляли собой кольца шириной 3 мм с прорезью шириной, отвечающей величине поперечной деформации (рис. 1).

Кольцевые образцы вырезали как из твэльных труб в состоянии поставки (отжиг при 580 °С в течение 3 ч, полностью рекристаллизованное состояние), так и из гидрированных отрезков труб длиной 75 мм.

Гидрирование проведено в газообразном водороде, образующемся при диссоциации TiH_2 . Температура гидрирования – 380 °С. Содержание водорода в образцах определялось двумя методами: взвешивания и металлографии.

Металлографические исследования проведены на оптическом микроскопе «Axio Observer. A1m».

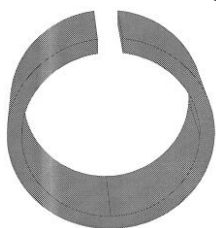


Рис. 1. Образцы для испытаний на малоцикловую усталость

Испытания на малоцикловую усталость (МЦУ) проводили путем поперечной деформации С-образных образцов (цилиндров, разрезанных по оси) в вакууме не хуже 10^{-3} Па, при температуре 350 °С. Критерий оценки сопротивления образцов МЦУ – число циклов до разрушения. Преимуществами метода изгибной деформации кольцевого образца являются: а) испытания проводятся на кольцевых образцах, вырезанных из реальных твэльных труб; б) большая по величине деформация, что упрощает процедуру ее измерения; в) возможность задавать большие циклические напряжения приложением относительно небольших усилий; г) соответствие такого нагружения циклической «овализации» при нестационарных режимах работы реактора.

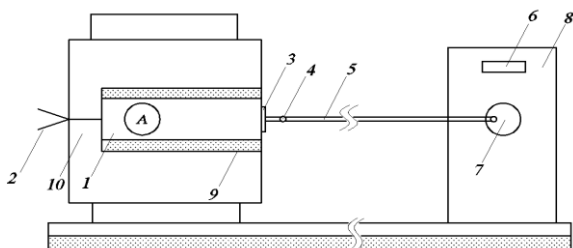


Рис. 2. Схема установки для испытаний на МЦУ: 1 – образец; 2 – термopapa; 3 – уплотнение, обеспечивающее передачу в камеру колебательных движений; 4 – цилиндрический шарнир; 5 – нагружающая штанга; 6 – электрическая лампочка для визуальной сигнализации об обрыве образца; 7 – кривошип; 8 – циклическое нагружающее устройство; 9 – печь нагрева; 10 – вакуумная камера

Схема установки для испытаний на МЦУ, электромеханическая схема автоматической регистрации количества циклов до разрушения и детали узла приложения нагрузки (А) приведены на рис. 2–4. Амплитуда деформации – $10^{-3} \dots 10^{-2}$, частота циклов ~ 0,2 Гц.

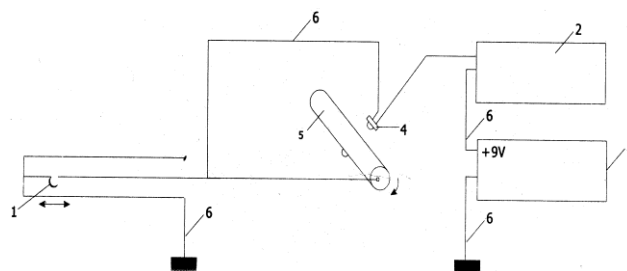


Рис. 3. Электромеханическая схема автоматической регистрации количества циклов до разрушения образца: 1 – образец; 2 – счетчик числа оборотов и электрическая лампочка, визуальнo сигнализирующая об обрыве образца; 3 – источник постоянного напряжения; 4 – устройство, включающее счетчик числа оборотов при повороте вала на 360°; 5 – вал нагружающего устройства с кривошипным механизмом; 6 – электрические цепи

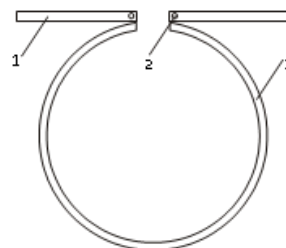


Рис. 4. Детали узла приложения нагрузки (А) (двойное шарнирное крепление образца): 1 – тяга; 2 – ось вращения шарнира; 3 – образец

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

2.1. СТРУКТУРНОЕ СОСТОЯНИЕ

Твэльные трубы из сплава Zr-1%Nb в состоянии поставки имеют двухфазную структуру, состоящую из равноосных зерен α_{Zr} размером 3...4 мкм с многочисленными мелкодисперсными (50...60 нм) выделениями β_{Nb} [1]. Металлографическая микроструктура твэльных труб, выбранных нами для испытаний и исследований (тест на соответствие), показана на рис. 5.

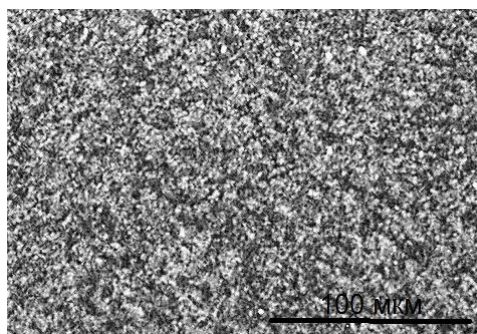


Рис. 5. Микроструктура твэльных труб Zr-1%Nb. Поперечное сечение

2.2. МОРФОЛОГИЯ ГИДРИДОВ

Исследование гидрированных образцов преследовало две цели: определения содержания водорода и коэффициента радиальной ориентации гидридов (рис. 6).

Концентрация водорода определялась по площади, занимаемой гидридами на поперечном сечении образца [3, 4]:

$$[H]_t = [H]_\delta \cdot F_\delta \cdot \frac{\rho_\delta}{\rho_\alpha \cdot (1 - F_\delta) + \rho_\delta \cdot F_\delta}, \quad (1)$$

где $[H]_t$ – концентрация водорода в образце (при комнатной температуре содержание водорода в твердом растворе α -Zr не превышает 1 ppm); $[H]_\delta$ – содержание водорода в δ -гидриде (17570 ppm); F_δ – доля площади, занимаемая гидридами (эквивалентно объемной доле гидридов); ρ_α – плотность α -Zr-матрицы при комнатной температуре (6550 кг/м³); ρ_δ – плотность δ -гидридов при комнатной температуре (5650 кг/м³).

Коэффициент ориентации гидридов определялся по формуле

$$F_n = \frac{\sum_i L_{ri}}{\sum_i (L_{ri} + L_{ci})}, \quad (2)$$

где F_n – коэффициент ориентации гидридов; L_{ri} – длина i -го радиального гидрида, ориентированного под углом 0...45° к радиальному направлению, и L_{ci} – длина i -го тангенциального гидрида, ориентированного под углом 45...90° к радиальному направлению.

В образцах, подготовленных к испытаниям на усталость, содержание водорода составляет 200 и 500 ppm; коэффициент ориентации гидридов $F_n \approx 0,08$.

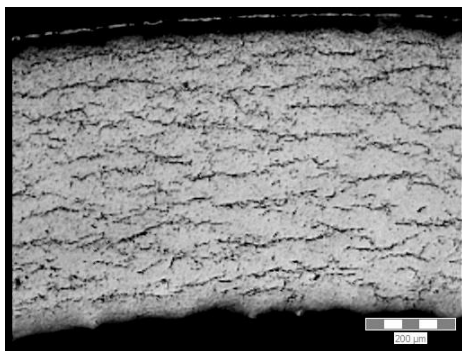


Рис. 6. Гидриды в твэльных трубах Zr-1%Nb с содержанием водорода 200 ppm; $F_n = 0,08$. Поперечное сечение

2.3. СОПРОТИВЛЕНИЕ УСТАЛОСТИ

Для определения соотношения между амплитудой деформации растяжение–сжатие C-образного образца и амплитудой общей деформации образца были проведены калибровочные испытания. Амплитуда деформации определялась с использованием компьютерного сканирования образцов и компьютерной обработки полученного отпечатка по методике, опубликованной ранее [5]. Результаты представлены на рис. 7.

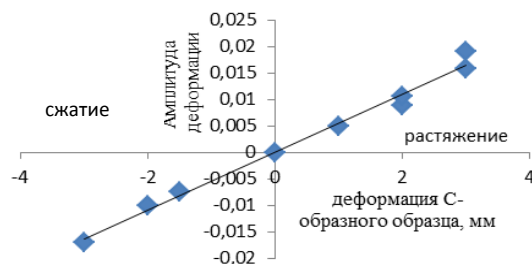


Рис. 7. Градуировочная кривая для кольцевых образцов с прорезью из сплава Zr-1%Nb

На рис. 8 приведены кривые усталости для негидрированных и гидрированных образцов твэльных труб Zr-1%Nb. Как видно из представленных данных, усталостная прочность гидрированных до 200 и 500 ppm образцов несколько выше, чем негидрированных: в случае испытаний с амплитудой колебаний $1,5 \cdot 10^{-2}$ число циклов до разрушения – 1006 на негидрированных образцах Zr-1%Nb, 1250 на образцах с содержанием водорода 200 ppm и 1298 на образцах с содержанием водорода 500 ppm.

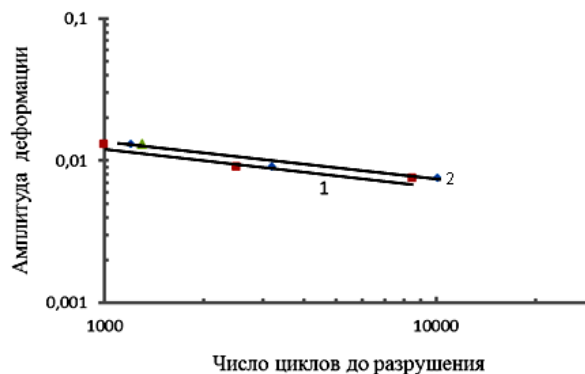


Рис. 8. Кривые усталости материала твэльных труб из сплава Zr-1%Nb при температуре 350 °C: ■ – сплав Zr-1%Nb; ♦ – сплав Zr-1%Nb с содержанием водорода 200 ppm; ▲ – сплав Zr-1%Nb с содержанием водорода 500 ppm

При температуре 350 °C значительная часть водорода (113 ppm) находится в твердом растворе. Yamanaka с сотрудниками провели исследования влияния водорода на модуль Юнга, модуль сдвига, твердость и пластичность циркония и установили, что, находясь в твердом растворе, водород приводит к уменьшению модуля Юнга, модуля сдвига, твердости и повышению пластичности [7]. Наблюдаемое в представленном выше цикле исследований незначительное повышение усталостной прочности образцов Zr-1%Nb при гидрировании может быть связано с повышением их пластичности.

На рис. 9 приведены результаты кратковременных механических испытаний твэльных труб из сплава Zr-1%Nb в зависимости от концентрации водорода. Температура механических испытаний – 350 °C. Согласно полученным данным, при температуре 350 °C предел прочности твэльных труб из Zr-1%Nb с гидрированием незначительно повышается (при содержании водорода вплоть до 500 ppm),

при этом пластичность на всех гидрированных образцах несколько выше, чем на негидрированных, вырезанных из твэльных труб.

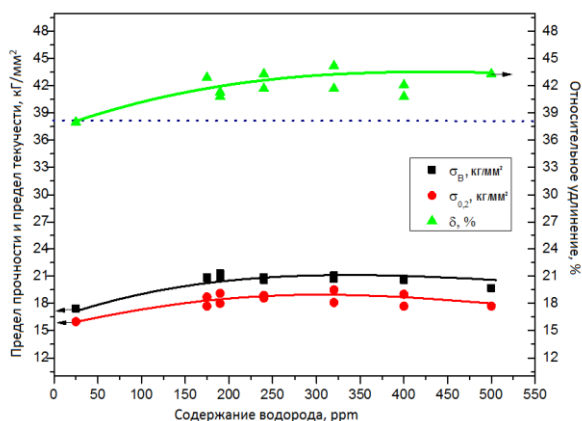


Рис. 9. Зависимости предела прочности, предела текучести и относительного удлинения твэльных труб из сплава Zr-1%Nb от концентрации водорода. Температура механических испытаний – 350 °C

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Проведены испытания как на негидрированных, так и на гидрированных (200 и 500 ppm) образцах твэльных труб на МЦУ при температуре 350 °C. Амплитуда поперечной деформации – $10^{-3} \dots 10^{-2}$, частота циклов – 0,2 Гц. Согласно полученным результатам водород в количестве 200...500 ppm незначительно повышает усталостную прочность твэльных труб из Zr-1%Nb. Например, в случае испытаний с амплитудой колебаний $1,5 \cdot 10^{-2}$ число циклов до разрушения составляет: 1006 на негидрированных образцах Zr-1%Nb, 1250 на образцах с содержанием водорода 200 ppm и 1298 на образцах с содержанием водорода 500 ppm.

2. Наблюдаемое повышение усталостной прочности может быть связано с тем, что, находясь в твердом растворе, водород повышает пластичность циркония и циркониевых сплавов. Данное предположение подтверждается результатами кратковременных механических испытаний.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. В.И. Солонин, А.С. Сотников. *Материаловедческие аспекты основ проектирования и конструирования тепловыделяющих элементов энергетических ядерных реакторов*: Учебное пособие. М.: Изд-во МГТУ им. Баумана, 2015, 221 с.
2. П-001-XX. Основные требования к обоснованию прочности и термомеханического поведения ТВС и твэлов в активной зоне реакторов ВВЭР // *Ядерная и радиационная безопасность*. 2015, №1(75).
3. R.S. Daum, Y.S. Chu, and A.T. Motta. Identification and quantification of hydride phases in Zircaloy-4 cladding using synchrotron X-ray diffraction // *Journal of Nuclear Materials*. 2009, v. 392, N 3, p. 453-464.
4. Y. Liu, Q. Peng, W. Zhao, and H. Jiang. Hydride precipitation by cathodic hydrogen charging method in zirconium alloys // *Materials Chemistry and Physics*. 2008, v. 110, N 1, p. 56-60.
5. С.П. Клименко, Т.П. Черняева, В.М. Грицина. Исследование деформации ползучести на образцах Zr-Nb-сплавов (Zr-1%Nb и Zr-2,5%Nb) и нержавеющей стали ЭИ-847 при релаксации напряжений // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Материалы реакторов на тепловых нейтронах»*. 2013, №5, с. 79-83.
6. S. Yamanaka, D. Setoyama, H. Muta, M. Uno, M. Kuroda, K. Takeda, T. Matsuda. Characteristics of zirconium hydrogen solid solution // *Journal of Alloys and Compounds*. 2004, v. 372, p. 129-135.

Статья поступила в редакцию 11.01.2017 г.

ВПЛИВ ВОДНЮ НА ОПР ОБОЛОНОК ЗІ СПЛАВУ Zr-1%Nb МАЛОЦИКЛОВОЇ УТОМИ

С.П. Клименко, Т.П. Черняева, В.М. Грицина, І.А. Петельгузов,
О.О. Слабоспицька, Г.П. Редкіна

При роботі у водному теплоносії цирконієві оболонки твелів поглинають частину водню, що утворюється при їх окисленні. Накопичений за час експлуатації водень здатний вплинути на утомлюючу міцність цирконієвих оболонок. На зразках шириною 3 мм, вирізаних із оболонок труб Zr-1%Nb (\varnothing 9,13 мм, товщиною стінки 0,68 мм) у стані поставки (фінальний відпал 580 °C, 3 год, рекристалізований стан), а також на зразках, вирізаних з відрізків труб, гідрованих у газоподібному водні, що утворюються при дисоціації TiH_2 , проведені випробування на малоциклову утому. Вміст водню в гідрованих зразках – 200 і 500 ppm; температура утомлюючих випробувань – 350 °C, частота коливань – 0,2 Гц, амплітуда деформації $10^{-3} \dots 10^{-2}$. За результатами проведених випробувань побудовані криві утоми для негідрованих та гідрованих зразків Zr-1%Nb. Встановлено, що при температурі 350 °C утомлююча міцність гідрованих зразків трішки вища, це може бути обумовлено тим, що та частина водню, яка знаходиться в твердому розчині, підвищує пластичність цирконію та цирконієвих сплавів.

EFFECT OF HYDROGEN ON LOW-CYCLE FATIGUE RESISTANCE OF Zr-1%Nb CLADDING

*S.P. Klimenko, T.P. Chernyayeva, V.M. Grytsyna, I.A. Petelguzov,
Ye.A. Slabospitskaya, A.P. Redkina*

When operated in aqueous coolant, zirconium fuel rod claddings absorb part of hydrogen formed during their oxidation. Hydrogen accumulated during the period of operation can affect the fatigue strength of zirconium claddings. This paper describes the low-cycle fatigue testing conducted on the samples 3 mm wide, cut out from Zr-1%Nb cladding tubes (\varnothing 9.13 mm, wall thickness 0.68 mm), in as-received state (finish annealing at 580 °C, 3 hours, recrystallized condition), as well as on the samples cut out from the tube sections hydrogenated in gaseous hydrogen, formed during the TiH_2 dissociation. Hydrogen concentration in the hydrogenated samples – 200 and 500 ppm; temperature of the fatigue tests – 350 °C; oscillation frequency – 0.2 Hz; strain amplitude – $10^{-3} \dots 10^{-2}$. Based on the results of the tests, fatigue curves were plotted for non-hydrogenated and hydrogenated Zr-1%Nb samples. It was established that at the temperature of 350 °C, the fatigue strength of hydrogenated samples is slightly higher. This may be due to the fact, that part of hydrogen that is in the solid solution increases the plasticity of zirconium and zirconium alloys.