

## КОЛЛАПС И ОБРАЗОВАНИЕ ГИДРИДОВ В ЦИРКОНИЕВЫХ ЭЛЕМЕНТАХ КОНСТРУКЦИИ АКТИВНЫХ ЗОН ВОДООХЛАЖДАЕМЫХ РЕАКТОРОВ

*В.М. Грицина, И.А. Петельгузов, Н.И. Рагулина, А.И. Стукалов, Т.П. Черняева*  
*Научно-технический комплекс «Ядерный топливный цикл», Национальный научный*  
*центр «Харьковский физико-технический институт, г. Харьков, Украина,*  
*e-mail: chernyaeva@kipt.kharkov.ua; fax: (0572)-35-27-54, телефон (0572)-35-60-26*

Проведені корозійні випробування ампульних зразків із сплаву Zr-1%Nb у воді під тиском 16,8 МПа при температурі 350°C впродовж 500...1000 годин. У процесі корозійних випробувань деякі із зразків зазнали схлопування (колапс). При металографічному дослідженні зразків, що пройшли корозійні випробування, встановлено, що в зразках, що зазнали схлопування, відбувається невластиве обраному температурному режиму корозії достатньо інтенсивне утворення гідридів. Результати проведених досліджень свідчать про вплив колапсу на утворення гідридів при корозії.

Проведены коррозионные испытания ампульных образцов из сплава Zr-1%Nb в воде под давлением 16,8 МПа при температуре 350°C в течение 500...1000 ч. В процессе коррозионных испытаний некоторые из образцов претерпели схлопывание (колапс). При металографическом исследовании образцов, прошедших коррозионные испытания, установлено, что в образцах, претерпевших схлопывание, происходит несвойственное выбранному температурному режиму коррозии достаточно интенсивное образование гидридов. Результаты проведенных исследований свидетельствуют о влиянии коллапса на образование гидридов при коррозии.

The corrosion tests of the Zr-1%Nb ampoule samples in water under pressure of 16.8 MPa at the temperature 350°C during 500...1000 hours are conducted. During corrosion tests some ampoule samples have undergone creep collapse. A metallographic investigations of samples, past corrosion tests, is established, that in samples, undergo collapse, the relatively high level of hydrides formation, what is an unusual for selected temperature conditions of corrosion. The results of carried out investigations testify to the collapse effect on the hydrides formation with corrosion.

### ВВЕДЕНИЕ

В практике эксплуатации ядерных реакторов известны случаи, когда взаимосвязь явлений, происходящих в материале узлов и деталей активной зоны, непредсказуема и приводит к аварийным ситуациям. Полагают [1], что разрыв канальной трубы АЭС «Pickering-2» канал G16, происшедший в августе 1983г., частично был вызван провисанием канальной трубы и ее соприкосновением с трубой каландра. Как следствие, холодное пятно, образовавшееся при контакте, стало местом накопления водорода, в нем образовались крупные гидриды, по которым произошло хрупкое разрушение. В рассмотренном случае формоизменение под облучением и нагрузкой не в силу единой или взаимосвязанной природы явлений, а в силу сложившейся ситуации (стечения ряда неблагоприятных факторов - соприкосновение канальной трубы с трубой каландра и ее локальное охлаждение) способствовало образованию гидридов, привело к разрушению трубы из-за замедленного гидридного растрескивания и в результате к созданию аварийной ситуации.

В начале 70-х были случаи выхода твэлов PWR из строя из-за явления крипового коллапса - локального схлопывания и разрушения оболочек твэлов под действием внешнего давления воды (рис.1) [2]. Условием, необходимым для крипового коллапса, является большой перепад давления на тонкой стенке и щель (длиной не менее одного-двух диаметров оболочки) под ней. Причины этого явления были

быстро осознаны, и криповый коллапс был технологически исключен. В то же время о явлении крипового коллапса забывать нельзя, стоит упустить его из виду и оно может проявить себя самым неожиданным и роковым образом.

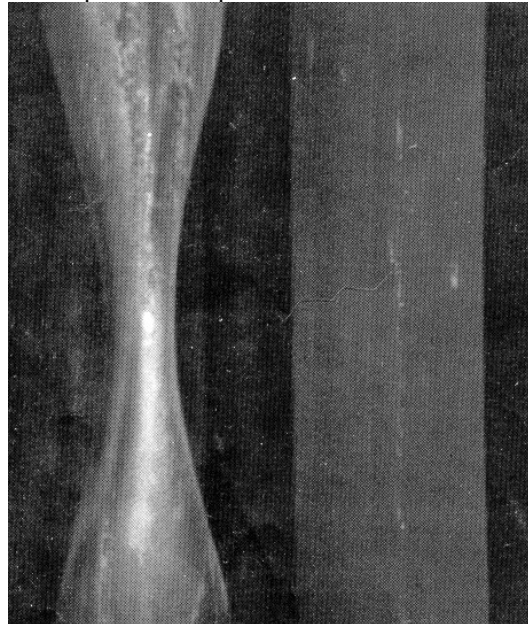


Рис.1. Один из твэлов, претерпевший коллапс при эксплуатации в реакторе PWR (образец слева) [2]

На пустотелых тонкостенных ампульных образцах из сплава Zr-1%Nb (патрубки от оболочечных труб с заглушками), претерпевших схлопывание при

коррозионных испытаниях, мы обнаружили относительно интенсивное образование гидридов, несвойственное для принятых температур коррозионных испытаний. Результаты наблюдений представлены в данной работе.

## 1. МАТЕРИАЛЫ, МЕТОДЫ ИСПЫТАНИЙ И ИССЛЕДОВАНИЙ

Материал всех составляющих (патрубок, заглушек, внутренних прутков) образцов, предназначенных для коррозионных испытаний, – сплав Zr-1%Nb.

Коррозионные испытания проведены на трубчатых образцах трех типов:

- пустотелые ампульные образцы, представляющие собой отрезки труб, с обоих концов которых стоят заглушки (торцы заварены),
- ампульные образцы с сердечником (патрубки, в которых находится пруток, с зазором 0,05 мм, торцы заварены) – имитаторы ТВЭЛОВ;
- пустотелые ампульные образцы с утолщенной стенкой.

Длина образцов 50 мм, их внешний диаметр 9,1 мм, внутренний – 7,8 мм на образцах двух первых типов и  $\varnothing 10,1$  мм  $\times$  8,3 мм на последнем из них. Термообработка образцов – штатная (отжиг 580°C в течение 3 ч).

Коррозионные испытания проведены в автоклавах из нержавеющей стали при температуре 350°C в воде под давлением 16,8 МПа. Характеристика воды: уровень pH – 6...6,5; исходная электропроводность –  $(2...5) \cdot 10^{-6}$  сименс/см. Длительность испытаний от 500 до 1000 ч.

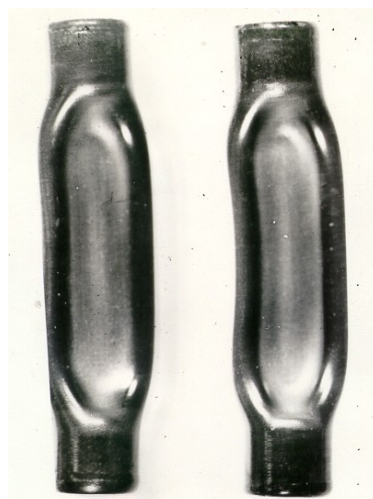
На образцах, прошедших коррозионные испытания, проведены:

- осмотр внешнего вида – цвета окисной пленки и формы;
- определение привеса;
- металлографические исследования.

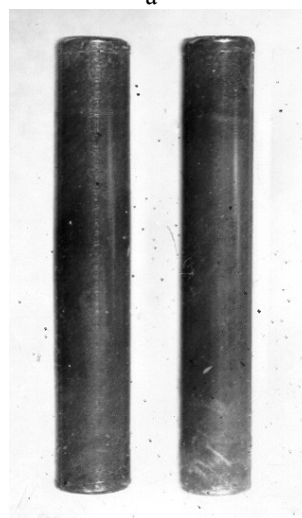
Металлографически исследовано поперечное сечение образцов, прошедших коррозионные испытания. Подготовка образцов к исследованиям включала – порезку, шлифовку и химическую полировку при комнатной температуре в электролите состава: H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> – 30 мл, HNO<sub>3</sub> – 30 мл, H<sub>2</sub>O – 30 мл и HF – 10 мл. Исследования проведены на микроскопе МИМ-8М. Увеличение при съемке – 200х.

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

**Внешний вид.** Все образцы, прошедшие коррозионные испытания, равномерно покрыты блестящей темно-синей окисной пленкой. Пустотелые ампульные образцы, прошедшие коррозионные испытания длительностью 500 ч и более, претерпели схлопывание; форма образцов двух других типов при коррозионных испытаниях не претерпела фиксируемых изменений (рис.2,а, б).



а

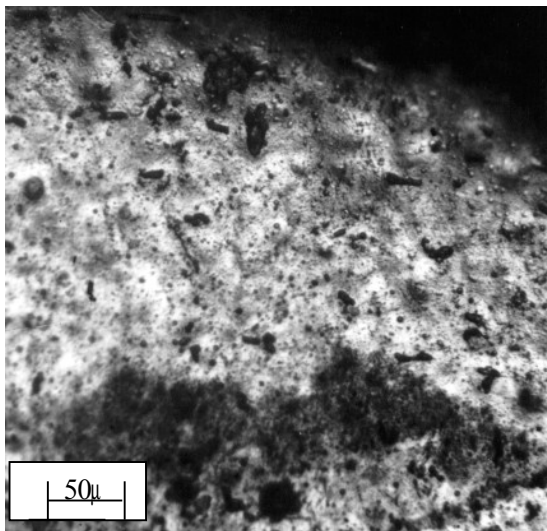


б

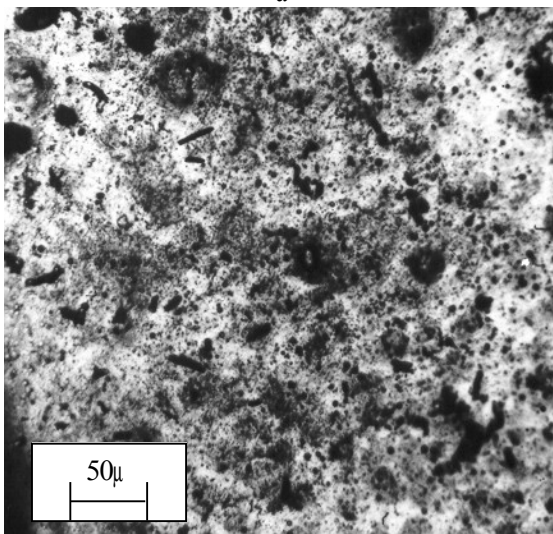
Рис.2. Внешний вид пустотелых ампульных образцов (а) и ампульных образцов с сердечником (б) после коррозионных испытаний в воде под давлением 16,8 МПа при 350°C в течение 1000 ч

**Привесы.** На образцах, прошедших коррозионные испытания в воде под давлением 16,8 МПа при температуре 350°C, величина привесов составляет 40 мг/дм<sup>2</sup> на пустотелых ампульных образцах и 35 мг/дм<sup>2</sup> на образцах двух других типов. Рассчитанная по результатам привеса толщина окисной пленки, образовавшейся в процессе окисления, равна 2,68 мкм на пустотелых ампульных образцах и 2,35 мкм на образцах с сердечником и с утолщенной стенкой.

**Гидриды.** Коррозионные испытания при принятом режиме не приводят к интенсивному образованию гидридов – в материале ампульных образцов с сердечником и образцов с утолщенной стенкой, прошедших коррозионные испытания, гидриды не являются характерной составляющей структуры (встречаются отдельные гидриды, что присуще и исходному материалу). Исключение составляют образцы, претерпевшие коллапс, в которых на местах округления присутствуют многочисленные гидриды (рис. 3,а, б).



а



б

Рис.3. Гидриды в образцах, претерпевших схлопывания в процессе коррозионных испытаний в воде под давлением 16,8 МПа при 350 °С в течение 1000 ч. а – область вдоль внешней поверхности, б – область вдоль внутренней кромки

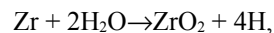
Распределение гидридов по сечению труб, претерпевших схлопывание, имеет ряд особенностей:

- слой шириной около 200 мкм вдоль внешней поверхности предрасположен к образованию окружных гидридов (см. рис.3,а). В этом слое гидриды имеют размер до 20 мкм, их средний размер 13 мкм, концентрация  $1,3 \cdot 10^4$  ч/см<sup>2</sup>, коэффициент ориентации гидридов –  $F_n = 0,1$ ;
- область вдоль внутренней кромки изгиба предрасположена к образованию радиальных гидридов (см.рис.3,б). В этой области трубки гидриды имеют длину до 25 мкм, их средняя длина 16 мкм, концентрация  $1,3 \cdot 10^4$  ч/см<sup>2</sup>, коэффициент ориентации гидридов –  $F_n = 0,88$ .
- внутренний слой труб не имеет ярко выраженной предрасположенности к образованию гидридов определенной ориентации.

Внутри труб гидриды меньшего размера и менее многочисленны, чем в приповерхностных слоях.

Количество водорода в материале труб, прошедших коррозионные испытания, представляет сумму его содержания в исходном материале (предельно-допустимое содержание водорода в циркониевых трубах 25 ppm, обычно его содержание в серийных трубах из сплава Zr-1%Nb не превышает 15 ppm) и количество водорода, поглощенного при испытании.

Количество водорода, поглощенного в процессе окисления:



характеризуется коэффициентом поглощения, определяемым как процент поглощенного водорода от образовавшегося в процессе реакции. Для наблюдаемых привесов последнее равно 85 ppm. При принятых режимах коррозионного испытания коэффициент поглощения водорода обычно не превышает (10...20) %. Для развития системы гидридов, обнаруженной в образцах, претерпевших схлопывание, коэффициент поглощения водорода должен превышать 50 %. Результаты проведенных исследований предоставляют неопровержимые доказательства того, что коллапс при коррозии способствует поглощению водорода и интенсифицирует образование гидридов. Зависимость предрасположенности материала труб к образованию гидридов определенной ориентации, по-видимому, отражает направления течения материала в процессе коллапса, а также характер пространственного распределения напряжений, возникающих при схлопывании.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено металлографическое исследование поперечного сечения пустотелых ампульных образцов из сплава Zr-1%Nb, прошедших коррозионные испытания в воде под давлением.

Некоторые из образцов в ходе коррозионных испытаний претерпели схлопывание. Установлено, что в образцах, претерпевших схлопывание, присутствует хорошо выраженная популяция гидридов, что несвойственно используемым температурным режимам коррозионных испытаний.

Полученный результат свидетельствует о необходимости исследования взаимосвязи явлений, происходящих в материалах активной зоны ядерных реакторов, и оценки опасности каждого из происходящих явлений с учетом непосредственного или косвенного их влияния на сопутствующие процессы.

### ЛИТЕРАТУРА

1. В. Knox. All zirconium tubes to be replaced at Pickering unite 1 and 2 // *Nuclear Engineering International*. 1984, v. 29, № 355, p.15-20.
2. D.G. Franklin, R.B. Adamson. Implication of zirconium creep and growth to light water reactor performance // *J. Nucl. Mater.* 1988, v.159, compl., p.12-21.