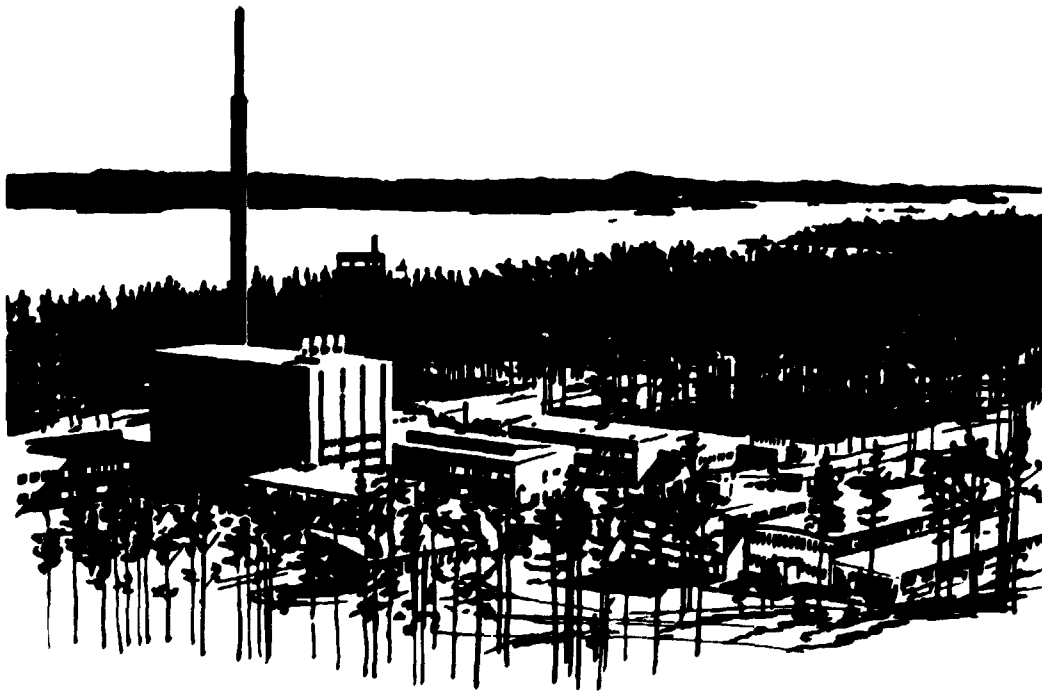


Studsvik Report

STUDSVIK/K4-81/45

VÄTEINDUCERAT FÖRDRÖJT BROTT I BESTRÅLAD ZIRCALOY-2

Kjell Norring
Evert Hellstrand



1981-08-20

Kjell Norring
Evert Hellstrand

VÄTEINDUCERAT FÖRDRÖJT BROTT I BESTRÅLAD ZIRCALOY-2
(STU-ram 80/81)

HUVUDINNEHÅLL

Väteinducerat fördröjt brott är en av de mer sannolika degraderingsmekanismerna för utbrända Zircaloy-kapslade bränsleelement.

Denna rapport beskriver fenomenet och en matematisk modell för sprickpropageringshastigheten. Med denna modell som grund diskuteras inverkan av spänningsintensitet, temperatur, sträckgräns och vätehalt.

De experimentella insatserna, med långtidsbelastning av såväl bestrålade som obestrålade CT-provstavar av Zircaloy-2 resulterade i att sprickor tillväxte i omkring en tredjedel av provstaverna. Fraktografiska studier visade dock att det inte i något fall var frågan om väteinducerat fördröjt brott.

Det är alltså föga troligt att utbrända Zircaloy-kapslade bränsleelement kan degraderas genom denna defekttyp vid långtidslagring i bassängen.

Godkänd av

R. Stenlund

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

	<u>Sid</u>
1. INLEDNING	1
2. VÄTEINDUCERAT FÖRDRÖJT BROTT	2
2.1 Allmänna erfarenheter	2
2.2 Matematisk modell	4
3. MATERIAL OCH EXPERIMENTELL TEKNIK	10
4. RESULTAT OCH DISKUSSION	13
5. SLUTSATSER	15
6. ERKÄNNANDE	16
REFERENSFÖRTECKNING	17
BILAGOR	
A. Tabell	
B. Figurer	

1981-08-20

1. INLEDNING

Bland ett antal tänkbara mekanismer för hur utbrända Zircaloy-kapslade bränsleelement kan degraderas vid långtidslagring i bassänger är väteinducerat fördröjt brott en av de mera sannolika. Tidigare erfarenheter av fördröjt brott i Zircaloy avser endast obestrålat material. Såvitt man kan bedöma är det normala kapslingsmaterialet, rekristalliserad Zircaloy-2, i det närmaste okänsligt för fördröjt brott i obestrålat tillstånd under normala miljöbetingelser. Fördröjt vätebrott har rapporterats i obestrålad Zircaloy-4 i vätgasatmosfär vid 25 - 70°C. Bestrålningen höjer emellertid hållfastheten med åtminstone en faktor 3 och detta kan väsentligt öka känsligheten för fördröjt brott.

1981-08-20

2. VÄTEINDUCERAT FÖRDRÖJT BROTT

2.1 Allmänna erfarenheter

Väte förekommer som förorening i så gott som alla metaller om inte mycket speciell tillverkningsteknik utnyttjas. Om halten blir för hög kommer vätet att påverka egenskaperna hos metallen. Det sätt på vilket egenskaperna påverkas är dock beroende på vilken metall det är fråga om.

Som utgångspunkt kan vi betrakta jämvikten mellan vätgas och väte löst i metallen (H_M)



Vätet i metallen föreligger på olika sätt beroende på om denna reaktion är endoterm eller exoterm (1,2,22). Entalpin för ovanstående reaktion är ett mått på metallens förmåga att ta upp väte. Ju mer exoterm reaktionen är desto högre är lösligheten för väte vid ett visst vätgastryck. I metallen där reaktionen är endoterm t ex Fe, Cu, Ni, Mo råder jämvikt mellan i metallen löst väte och vätgas i inre hålrum som porer o d. Är däremot reaktionen exoterm som hos t ex Zr, Ti, V, Nb föreligger istället en jämvikt mellan löst väte och utskild hydrid. Dessa metaller kallas också hydridbildande eftersom de löser väte i relativt stor utsträckning och när sedan lösligheten i den fasta fasen överskrids bildas hydrider.

De största erfarenheterna av vätets inverkan på metallens egenskaper finns för de klassiska konstruktionsmaterialen det vill säga de med en endoterm reaktion. Under de senaste decennierna

1981-08-20

har också förståelsen för väteets inverkan på metaller med en exotermt beteende ökat påtagligt. Främst har då olika fenomen i titan (flygindustrin, fusionsreaktorer) och zirkonium (t ex 3) för fissionsreaktorer studerats.

När det gäller fördröjt brott i zirkoniumlegeringar så finns mest faktaunderlag för kallbearbetat Zr-2.5 % Nb. Detta beror på att 1974 respektive 1975 uppstod, efter flera års drift, läckage på grund av sprickor invid infattningarna av de valsade tryckrören på enheterna 3 och 4 på de kanadensiska Pickering-reaktorerna (4 - 6). Dessa är av CANDU-typ dvs tungvattenreaktorer av tryckvattentyp. Det kan nämnas att inga sprickor upptäckts i enheterna 1 och 2 där tryckrören är konstruerade i Zircaloy-2 (23). Dessa läcker initierade ett stort forskningsprogram som gör att förståelsen för fenomenet ökat högst väsentligt.

I stora drag kan brottprocessen vid väteinducerat fördröjt brott (HIDC; Hydrogen Induced Delayed Cracking) i zirkonium beskrivas på följande sätt. I en konstruktionsdetalj som är utsatt för inre eller yttre spänningar kommer väte att diffundera till områden där spänningen är högst, t ex områden framför sprickor eller andra diskontinuiteter såsom hydrider. Där kommer väte att ånyo utskiljas som zirkoniumhydrid. Det är nämligen ur energisynpunkt mer fördelaktigt att bilda hydrid i områden med högre dragspänning dvs lägre löslighet i fast fas. Zirkoniumhydriden är spröd och kommer när den nått en viss kritisk storlek att brista. Sprickan har propagerat ett litet stycke. Processen kommer sedan att upprepa sig tills detaljen brister. Det är alltså en diskontinuerlig spricktillväxt.

1981-08-20

2.2 Matematisk modell

En matematisk modell för HIDC i zirkoniumlegeringar har utvecklats vid AECL. Eftersom den modellen kommer att utnyttjas i fortsättningen är en summarisk sammanfattning på sin plats. För den som önskar ta del av modellen i detalj så kan det nämnas att den finns detaljerat beskriven i referens 7 - 11 och basdata finns rapporterade i referens 12 - 19. Bilaga A redovisar använda beteckningar.

Grundantagandet i modellen är att sprickutbredningshastigheten kan relateras till tillväxten hos zirkoniumhydrid i spänningsfältet framför spetsen hos en existerande spricka. Första steget blir då att beräkna flödet av väteatomer från ett område under lägre spänning in i en hypotetisk cylinder runt sprickspetsen:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{2\pi D_H}{\Omega_{Zr} \phi(l,L)} [C_s(L) - C_s(1)] \quad (1)$$

där:

$$D_H = 2.17 \cdot 10^{-7} \exp(-8380/RT) \quad (2)$$

Utvecklas sedan löslighetsdifferensen i ekvation 1 så kan den skrivas:

$$C_s(L) - C_s(1) = C_o * \exp [P(L) \bar{V}_{Hydrid}/RT] * \\ * [1 - \exp(\Delta P \bar{V}_{Hydrid}/RT)] \quad (3)$$

där:

1981-08-20

$$C_o = 9.03 \exp (-8 250/RT) \quad (4)$$

$$P(L) = - \frac{2 (1+\nu) K_I}{3 \sqrt{2\pi} L} \quad (5)$$

och

$$P(l) = -2.4 \sigma_y \quad (6)$$

I Figur B.1 illustreras hur koncentrationsdifferensen $(C_s(L) - C_s(l))/C_o$ påverkas av sträckgränsen vid olika K_I/\sqrt{L} -kvot. Man noterar att en hög sträckgräns dvs högt $P(l)$ -värde ger stor koncentrationsdifferens, eller med andra ord en hög sträckgräns ger större drivande kraft för vätediffusionen till sprickspetsen.

En något mer sofistikerad beräkning av $C_s(L) - C_s(l)$ har redovisats i referens 10 men många grunddata för denna beräkning saknas ännu varför ovanstående något förenklade modell utnyttjas.

Insätts ovanstående data i ekvation 1 så erhåller man:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{2\pi D_H C_o}{\Omega_{Zr} \phi(l,L)} \{ \exp [P(L) \cdot \bar{v}_{Hydrid}/RT] \} *$$

$$* [1 - \exp (\Delta P \cdot \bar{v}_{Hydrid}/RT)] \quad (7)$$

Nu måste alltså detta väteatomflöde till området runt sprickspetsen kopplas till utbredningshastigheten för själva sprickan. Detta har gjorts med två olika modeller. Den ena baserad på kontinuerlig spricktillväxt och den andra på att hydriden tillväxer till en viss kritisk storlek och sedan brister dvs ett cykliskt

1981-08-20

förlopp. Den senare modellen, kallad "hinged hydride" ligger närmare det i praktiken observerade brottförloppet.

Följande uttryck för propageringshastigheten erhålls:

$$v_K = \frac{\Omega_H}{1.66 W} \cdot \frac{dn}{dt} \quad (8)$$

där faktorn 1.66 kommer ifrån antagandet att δ -hydrid med sammansättningen $Zr H_{1.66}$ bildas.

$$v_H = \frac{4 \Omega_H}{\alpha \cdot \pi \cdot l_c} \cdot \frac{dn}{dt} \quad (9)$$

I ekvation 9 har då antagits att hydridutskiljningen vid sprickspetsen sker som en enda hydrid. Skulle utskiljningen istället ske som flera mindre hydrider inom en betraktad volym måste ekvationen modifieras något (11). Relevanta data för detta fall saknas dock varför ekvation 9 utnyttjas.

I den kontinuerliga modellen antas att förloppet kan indelas i två delar med olika V_K - K_I -relationer (9). Den högsta propageringshastigheten erhålls vid övergången mellan dessa delar, vilket antas ske vid en spänningsintensitet av omkring $20 \text{ MNm}^{-3/2}$. Ökas K_I däröver minskar V_K något. I "hinged hydride" modellen ökar sprickutbredningshastigheten svagt med ökande K_I i hela intervallet.

Man har också empiriskt fastlagt ett tröskelvärde på K_I under vilket ingen spricktillväxt sker (10,20). K_{IH} är av storleksordningen $6 \text{ MN m}^{-3/2}$ i temperaturintervallet 120 - 300°C.

1981-08-20

Denna, mycket knapphändigt redovisade, matematiska modell kan nu utnyttjas för att studera hur olika parametrar påverkar sprickutbredningshastigheten. Därvid kommer "hinged hydride" varianten av tillväxthastighetsberäkningen att utnyttjas eftersom den tycks överensstämma bättre med gjorda observationer. Följande parametrar skall betraktas:

- spänningsintensitet (K_I)
- temperatur (T)
- sträckgräns (σ_y)
- hydridavstånd (L)

Vissa grunddata krävs för dessa beräkningar. Dessa har uppmätts och redovisas under §3. Det gäller främst hydridavståndet i det använda materialet och sträckgränsen vid 150°C.

Temperaturberoendet illustreras i Figur B.2. Där framgår det att en temperaturökning från 50°C till 250°C ökar propageringshastigheten med ungefär två tiopotenser. Det är huvudsakligen produkten $D_H C_O$ dvs diffusionshastigheten och lösligheten som påverkas (ekvation 7). I "hinged hydride" modell är också den kritiska hydridstorleken (l_c) temperaturberoende. Andra termer har också ett mindre temperaturberoende men inverkar inte lika kraftigt. Mätningar av aktiveringsenergin har givit mycket skiftande resultat (10,11). De ligger i intervallet 6 - 18 kcal/mol. Ett realistiskt värde på 15.6 kcal/mol har nyligen rapporterats (10).

Som redan tidigare nämnts ger de olika kopplingarna mellan tillflödet av väteatomer till sprickspetsen och tillväxthastigheten olika

1981-08-20

spänningsintensitetsberoende. "Hinged hydride" modellen (Figur B.3) ger en dubblering av propageringshastigheten om K_I ökas från $6 \text{ MN m}^{-3/2}$ till $45 \text{ MN m}^{-3/2}$. Den kontinuerliga tillväxtmodellen visar dock en halvering (Figur 3) av propageringshastigheten om K_I ändras från $20 \text{ MN m}^{-3/2}$ till $45 \text{ MN m}^{-3/2}$.

Nästa parameter som beaktats är hydridavståndet (L) som ju avspeglar vätehaltens inverkan på propageringshastigheten. Grovt generaliserat är ju hydridavståndet omvänt proportionellt mot vätehalten. Figur B.4 visar att inverkan av L på spricktillväxthastigheten är relativt måttlig. Den stegring som syns vid korta hydridavstånd beror på att den plastiska zonens utbredning (r_p) och hydridavståndet (L) närmar sig varandra storleksmässigt. Eftersom ju $l = r_p/2$ kommer termen $\phi(l, L) \sim \ln(L/l)$ då att ändras i högre grad än annars vid ändringar av L eller l . En självklarhet kanske ändå bör påpekas nämligen att denna typ av brott ju kräver utskiljning av hydrider eller med andra ord att den totala vätehalten i materialet måste vara högre än lösligheten under rådande temperatur och spänningsförhållanden.

När det gäller sträckgränsens inverkan på spricktillväxthastigheten så visar den ovan skisserade matematiska modellen ett mycket måttligt inflytande (Figur B.5). En svag ökning med ökande sträckgräns anges. Man bör dock hålla i minnet att modellen är utvecklad och testad för en enda zirkoniumlegering Zr-2.5 % Nb som har hög sträckgräns varför inverkan av hållfastheten egentligen aldrig beaktats av modellbyggarna. Det är därför mycket troligt att inverkan av

1981-08-20

sträckgränsen underskattas av modellen. Detta visas bl a i Figur B.1 där det ju framgår att den drivande kraften för vätediffusionen är påtagligt beroende av sträckgränsen. I modellen (ekvation 1) motverkas denna ökning av att termen $\phi(L/l)$ ökar med sträckgränsen. Plasticeringen framför sprickan vid låg sträckgräns blir ju också betydande och torde påverka spricktillväxten. Den kraftiga stegringen vid cirka $30 \text{ MN m}^{-3/2}$ på "hinged hydride"-kurvan har samma förklaring som nämnts ovan vid korta hydridavstånd.

1981-08-20

3. MATERIAL OCH EXPERIMENTELL TEKNIK

Som utgångsmaterial användes en 5 mm tjock Zircaloy-2 plåt. Texturen på plåten var sådan att baspolerna låg ca 60° från normalriktningen mot tvärriktningen. Proverna orienterades så att eventuell sprickutbredning skulle ske i tvärriktningen. Materialet var rekristalliserat med en likaxlig kornstruktur.

Tre olika materialvarianter ingick i undersökningen:

- A: obestrålat med förhöjd vätehalt
- B: bestrålat med normal vätehalt
- C: bestrålat med förhöjd vätehalt

Materialen A och C gavs en förhöjd vätehalt genom värmebehandling i vätgashaltig atmosfär vid 400°C. Vätehalten uppmättes efteråt till 160 ppm.

För provningen användes CT-provstavar av de dimensioner som visas i Figur B.6a. De förut-mattades så att ligamentet blev 6 - 6.5 mm.

De prov som skulle bestrålas (B och C) placerades i slinga 1 i R2-reaktorn i Studsvik. Den maximala stråldosen uppmättes till $4.8 \cdot 10^{24}$ n/m² (E > 1 MeV) (21). Efter bestrålningen demonterades riggen och proven belastades i krypprovriggar under omkring 1 000 timmar eller till brott vid olika laster och en temperatur på 150°C. Avsikten var att spänningsintensiteten vid belastningsstarten skulle variera från $7 \text{ MN m}^{-3/2}$ till $30 \text{ MN m}^{-3/2}$. Det verkliga utfallet blev 5 - 35 $\text{MN m}^{-3/2}$.

1981-08-20

Några prov värmebehandlades vid 475°C i en timme innan de belastades eftersom (10) anger att en sådan värmebehandling påverkar sprickpropageringshastigheten vid låg spänningsintensitet ($K_I < 15 \text{ MN m}^{-3/2}$). Skälet skulle vara att en värmebehandling ändrar förhållandena invid sprickspetsen (jfr låg-hög sträckgräns). Eftersom värmebehandlingen gjorts även på bestrålade prov har samtidigt en betydande utglödning av defekten ej kunnat undvikas för dessa.

Efter belastningen bröts proven upp och brottyterna studerades i optiskt mikroskop och svepelektronmikroskop (Figur B.6b).

För att kunna använda den matematiska modell som diskuterats tidigare behövs vissa grunddata om materialet, främst hydridavstånd (L) och sträckgräns vid 150°C för bestrålad Zircaloy-2.

Hydridavståndet uppmättes i material med normal respektive förhöjd vätehalt (160 ppm). Proven hade bestrålats men inte belastats före hydridstudien. L-värdet uppmättes till $57 \pm 24 \mu\text{m}$ för den högre vätehalten (65 mätvärden). För den låga vätehalten är det svårt att ange ett värde eftersom hydriderna är så fåtaliga. Figurerna B.7 och B.8 visar hydridstrukturen i de bägge materialvarianterna.

Som referens har hydridavståndsfördelningen mätts på två Zircaloy-2 stavar som använts i en svensk kraftreaktor av BWR-typ. Medelutbränningen var för båda stavarna omkring 23 MWd/kg U. L uppmättes till $204 \pm 102 \mu\text{m}$ (80 mätvärden).

1981-08-20

För alla dessa mätningar av L-värden gäller att de utförts vid rumstemperatur. Lösligheten för väte i zirkonium är ju cirka 60 gånger högre vid provningstemperaturen (150°C) varför speciellt vid låga vätehalter ett större L-värde kan vara för handen under belastningen i krypprovsmaskinerna (se ekvation 4).

För att få hållfasthetsdata, främst sträckgränsen, för bestrålad Zircaloy-2 vid 150°C drogs två tidigare bestrålade stavar till brott med följande resultat (Figur B.10).

<u>Stav nr</u>	$\sigma_{0.2}$ <u>MPa</u>	σ_B <u>MPa</u>	ϵ_t <u>%</u>
1	449	449	6.0
2	445	478	5.1

1981-08-20

4. RESULTAT OCH DISKUSSION

Totalt belastades i krypprovmaskinerna 24 prov. Av dessa gick fem till brott före det att provning avbröts (B2, B5, C3, C6, C9). I ytterligare fyra prov visade det sig att sprickan propagerat under belastningen. Huvuddelen av proven, 15 stycken, visade dock ingen sprickpropagering, vilket framgår av Tabell A.1 där primärdata redovisas. Eftersom propageringshastigheter varierar relativt lite med spänningsintensiteten (Figur B.3) kan K_I vid medelsprickdjupet relativt väl användas som ett medelvärde för K_I under propageringen.

Med ett enda undantag (A1) så var det de högst belastade proven inom varje materialvariant som uppvisade spricktillväxt (Figur B.9). Detta bör då jämföras med modellens relativt svaga spänningsintensitetsberoende.

Fraktografiskt har brottytorna vid HIDC i Zircaloy (26) och Zr-2.5 % Nb (25) karakteriserats som bestående av fjäderlika små skivor (feathery platelets). Brottytan har också i de allra flesta fall striationer parallella med sprickfronten. Brottytorna hos de sprickor som propagerat under belastningen visar inga striationer och har en karaktär som avviker från den som beskrivits för HIDC (Figur B.11 - B.24). Detta gäller för alla tre materialvarianterna, även om brottytorna i de tre fallen har olika utseenden. Speciellt i de bestrålade proven med hög vätehalt (Figur B.19 - B.24) har brottet ofta löpt genom de spröda hydriderna (Figur B.20, B.21) med brottytan har utan tvekan dimpelkaraktär (Figur B.24). Observera dock på Figur B.20 och

1981-08-20

B.21 hydridernas skiftande orientering i brottytan. Även de två andra materialvarianterna har givit brottytor med dimpelmönster.

Brottet vid HIDC propagerar ju genom en omorientering av hydriderna under inverkan av spänningsfältet framför sprickspetsen. Därför har efter belastning och fraktografiska studier tre prov snittats för att ge möjlighet att tyvärr vid rumstemperatur studera hydriderna invid sprickor som propagerat (Figur B.25 - B.26). Några tecken på att hydriderna orienterat sig parallellt med den propagerande sprickan finns ej. Sprickan tycks ha propagerat även vinkelrätt mot hydridernas längsaxel. Även i dessa figurer ser man, av profilen på brottytan, att det är frågan om ett dimpelbrott och ej HIDC. Den senare brottypen ger en jämnare brottyta (25).

Det är möjligt att en cyklisk variation av temperaturen, inom ett lämpligt intervall, skulle kunna ge en omorientering av hydriderna i bestrålad Zircaloy-2 och därmed HIDC. En sådan variation är dock inte för handen under de i denna undersökning beaktade förhållandena, nämligen bassänlagring av utbrända bränslestavar. Normal reaktordrift ger visserligen en upprepad temperaturvariation, men intervallet är inte det lämpliga och HIDC har aldrig observerats på kapslingsmaterialet efter normal drift. Någon punkt i svenska BWR och PWR reaktorer som har en temperatur och lastkaraktäristik som motsvarar de detaljer i CANDU-reaktorerna som givit HIDC finns ej. Det verkar därför ej troligt att väteinducerat fördröjt brott i Zircaloy-2 kan utgöra något problem för de svenska kärnkraftreaktorerna.

1981-08-20

5. SLUTSATSER

En teoretisk betraktelse, med utgångspunkt från den av AECL utvecklade modellen för väteinducerat fördröjt brott, ger som resultat att under de i försöken rådande förhållandena borde en spricka propagera med en hastighet av 10^{-9} till 10^{-8} m/s. I cirka 40 % av de under omkring 1 000 timmar belastade proven propagerade också sprickor. Spricktillväxt noterades i både obestrålade och bestrålade provstavar. Inte i något fall var det dock frågan om HIDC utan det rörde sig i stället om långsamma duktila brott.

Det är alltså föga troligt att utbrända Zircaloy-kapslade bränsleelement degraderas genom denna defekttyp vid långtidslagring i bassängen.

1981-08-20

6. ERKÄNNANDE

Föreliggande arbete har utförts med medel från Styrelsen för Tekniska Utvecklings ramanslag för materialteknisk forskning i Studsvik.

1981-08-20

REFERENSFÖRTECKNING

1. DUTTON, R
Hydrogen embrittlement in hydride forming metals.
ASM/CIC Symposium on Hydrogen in Metals
Montreal 1978.
2. McLELLAN, R B, HARKINS, C G
Hydrogen interaction with metals.
Materials Science and Engineering
18(1975) pp 5 - 35.
3. COLEMAN, C E, HARDIE, D
The hydrogen embrittlement of α -zirconium
- A review.
Journal of the Less-Common Metals
11(1966) pp 168 - 185.
4. PERRYMAN, E C W
Pickering pressure tube cracking experience.
Nuclear Energy 17(1978) No 2, pp 95 - 105.
5. ELLS, C E
Influence of hydrogen on the behaviour
of zirconium alloys in CANDU reactors.
Hydrogen in Metals Annual Volume 1978,
pp 32 - 44.
6. ELLS, C E, VAN DER KUUR, J H
Demonstration of crack growth by
delayed hydrogen cracking in the
rolled joints of Zr-2.5 wt % Nb
pressure tubes.
AECL 6853. Atomic Energy of Canada Ltd,
1980.
7. DUTTON, R, PULS, M P
A theoretical model for hydrogen induced
sub-critical crack growth.
Effect of Hydrogen on Behaviour of
Materials. Metal Society, New York
1976, pp 516 - 528.
8. DUTTON, R et al
The mechanism of hydrogen-induced
delayed cracking in zirconium alloys.
Second International Congress on
Hydrogen in Metals, Paris 1977.
9. DUTTON, R et al
Mechanisms of hydrogen induced delayed
cracking in hydride forming materials.
Metallurgical Transactions 8A(1977),
pp 1553 - 1562.

1981-08-20

10. SIMPSON, L A, PULS, M P
The effects of stress, temperature and hydrogen content on hydride-induced crack growth in Zr-2.5 pct Nb.
Metallurgical Transactions 10A(1979)
pp 1093 - 1105.
11. COLEMAN, C E, AMBLER, J F R
Delayed hydrogen cracking in Zr-2.5 wt % Nb alloy.
Reviews on Coatings and Corrosion 3(1979)
No 2/3 pp 105 - 157.
12. PULS, M P
Hydrogen-Induced Delayed Cracking:
1 strain energy effects on hydrogen solubility.
AECL 6302 Atomic Energy of Canada Ltd
1978.
13. KEARNS, J J
Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4.
Journal of Nuclear Materials 22(1967)
pp 292 - 303.
14. CANN, C D et al
Determination of the terminal solid solubility of hydrogen in zirconium at low hydrogen concentrations.
AECL 5996 Atomic Energy of Canada Ltd
1978.
15. ÖSTBERG, G
Determination of hydride solubility in alpha phase zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4.
Journal of Nuclear Materials 5(1962),
pp 208 - 215.
16. CANN, C D, ATRENS, A
A metallographic study of the terminal solubility of hydrogen in zirconium at low hydrogen concentrations.
Journal of Nuclear Materials 88(1980),
pp 42 - 50.
17. SAEATZKY, A
The diffusion and solubility of hydrogen in alpha phase Zircaloy-2.
Journal of Nuclear Materials 2(1960),
pp 62 - 68.

1981-08-20

18. ROSINGER, H E et al
Young's modulus of crystal bar zirconium and zirconium alloys (Zircaloy-2, Zircaloy-4, zirconium-2.5 wt % niobium) to 1 000 K.
AECL 5231 Atomic Energy of Canada Ltd, 1975.
19. SIMPSON, L A, CANN, C D
Fracture toughness of zirconium hydride and its influence on the crack resistance of zirconium alloys.
Journal of Nuclear Materials 87(1979), pp 303 - 316.
20. SIMPSON, L A
The critical propagation event for hydrogen-induced slow crack growth in Zr-2.5 % Nb.
Third International Conference on Mechanical behaviour of materials: Cambridge 1979.
21. TÄGTSTRÖM, B
Exp-R2-MO50L Bestrålningsrapport.
K3-81/10 Studsvik Energiteknik AB, 1981.
22. TYSON, W
Hydrogen in metals.
Canadian Metallurgical Quarterly 18(1979), pp 1 - 11.
23. NORTHWOOD, D O
Hydrides and delayed hydrogen cracking in zirconium alloys.
Environmental-sensitive fracture of engineering materials.
TMS of AIME Chicago 1977, pp 451 - 463.
24. CUBICCIOTTI, D, JONES, R L
EPRI-NASA Cooperative projekt on stress corrosion cracking of zircaloys.
EPRI NP-717 Electric Power Research Institute 1978, pp 6-1 - 6-12.
25. NUTTALL, K, ROGOWSKI, A J
Some fractographic aspects of hydrogen-induced delayed cracking in Zr-2.5 wt % Nb alloys.
Journal of Nuclear Materials 80(1979), pp 279 - 290.

1981-08-20

26.

COX, B

A fractographic distinction between
hydride cracking and stress corrosion
cracking in zircalloys.

AECL-6181 Atomic Energy of Canada Ltd
1978.

1981-08-20

Använda beteckningar: (se även figur Bilaga A i slutet av bilagan)

α : axelförhållande hos den vid sprickspetsen utskilda hydriden. Antas vara en ellips (lillaxeln/storaxeln) $\alpha = 0.1$ har använts.

C_o : lösligheten för väte i α -zirkonium i spänningslöst tillstånd (atomfraktion).

$C_s(x)$: lösligheten för väte i α -zirkonium under pålagd yttre spänning. Avståndet x från sprickspetsen (atomfraktion).

D_H : diffusionskonstanten för väte i α -zirkonium (m^2/s).

dn/dt : flödet av väteatomer från avståndet L till l från sprickspetsen (H-atomer/ $s \cdot m$).

E : Elastisitetsmodul (N/m^2). För Zircaloy-2 gäller enligt (19): $E = (97.08 - 0.058(T-273)) 10^9 N/m^2$.

$\phi(l,L)$: en funktion av l och L

$$\phi = \int_l^L r^{-1} \exp \frac{f(r)}{RT} dr$$

med

$$f(r) = \frac{2(1+\nu) K_I \bar{V}_H}{3 \sqrt{2\pi r}} + \frac{(1+2\nu^2) K_I^2 \bar{V}_H}{2\pi r E}$$

Vanligen kan detta med tillräcklig noggrannhet approximeras till $\phi(l,L) = \ln(L/l)$ eftersom bidraget från $\exp(f(r)/RT)$ oftast har liten inverkan på resultatet.

K_I : spänningsintensiteten ($N/m^{-3/2}$).

L : avståndet från sprickspetsen till vätekällan (låg spänning) (m).

l : avståndet från sprickspetsen till vätesänkan (m)

$$l = \frac{r_p}{2} = \frac{K_I^2}{12 \pi \sigma_y^2}$$

1981-08-20

l_c : kritisk hydridstorlek vid hinged hydrid tillväxt (m). Enl (8) är

$$l_c = 0.019 \exp(-6560/RT)$$

ν : Poissons tal.

Ω_H : atomvolymen för väte i α -zirkonium:
 $2.7 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3$.

Ω_{Zr} : atomvolymen för zirkonium i α -zirkonium:
 $2.3 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3$.

$P(x)$: hydrostatiska trycket på avståndet x från sprickspetsen. Negativt i drag (N/m^2).

ΔP : skillnaden i hydrostatiskt tryck vid l och L . $\Delta P = P(l) - P(L)$.

R : allmänna gaskonstanten ($R = 1.987$ cal/mol·grad i ekv 2 och 4 och $R = 8.314$ J/mol·grad i ekv 3 och 7).

r : avstånd från sprickspetsen (m).

r_p : radien hos plastiska zonen (m).

σ : pålagd spänning (N/m^2).

σ_Y : sträckgräns (N/m^2).

T : temperatur (K).

\bar{V}_H : partiella molära volymen för väte i α -zirkonium: $7 \cdot 10^{-7} \text{ m}^3/\text{mol}$.

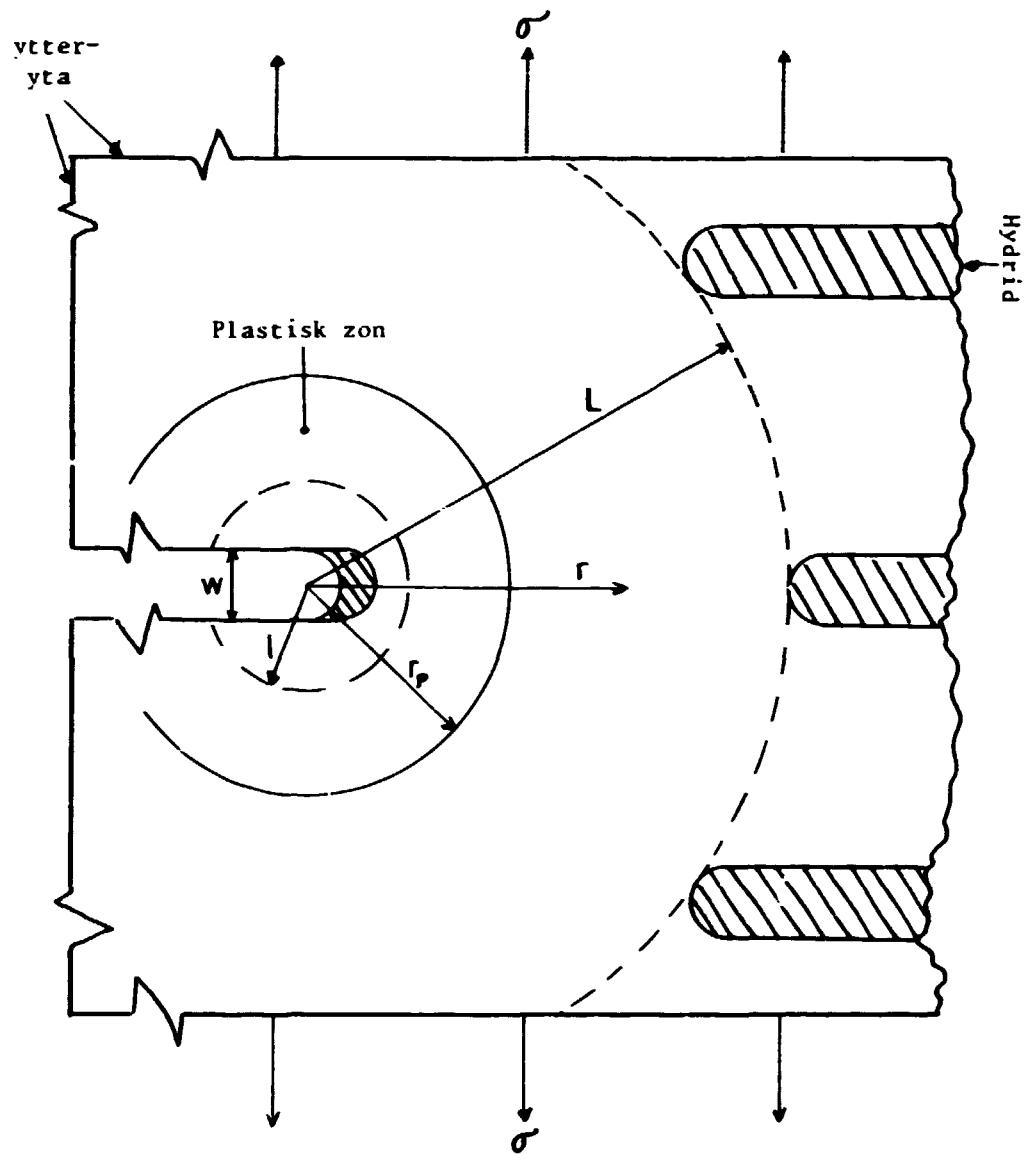
\bar{V}_{Hydrid} : partiella molära volymen för väte i hydrid: $14 \cdot 10^{-7} \text{ m}^3/\text{mol}$.

V_H : tillväxthastighet vid hinged hydride tillväxt (m/s).

V_K : tillväxthastighet vid kontinuerlig tillväxt (m/s).

W : COD hos den existerande sprickan. Sprickspetsradien antas vara $W/2$ (m).

$$W = \frac{K_I^2 (1-\nu^2)}{\sigma_Y E}$$



Figur 1

Illustration till använda beteckningar (9).

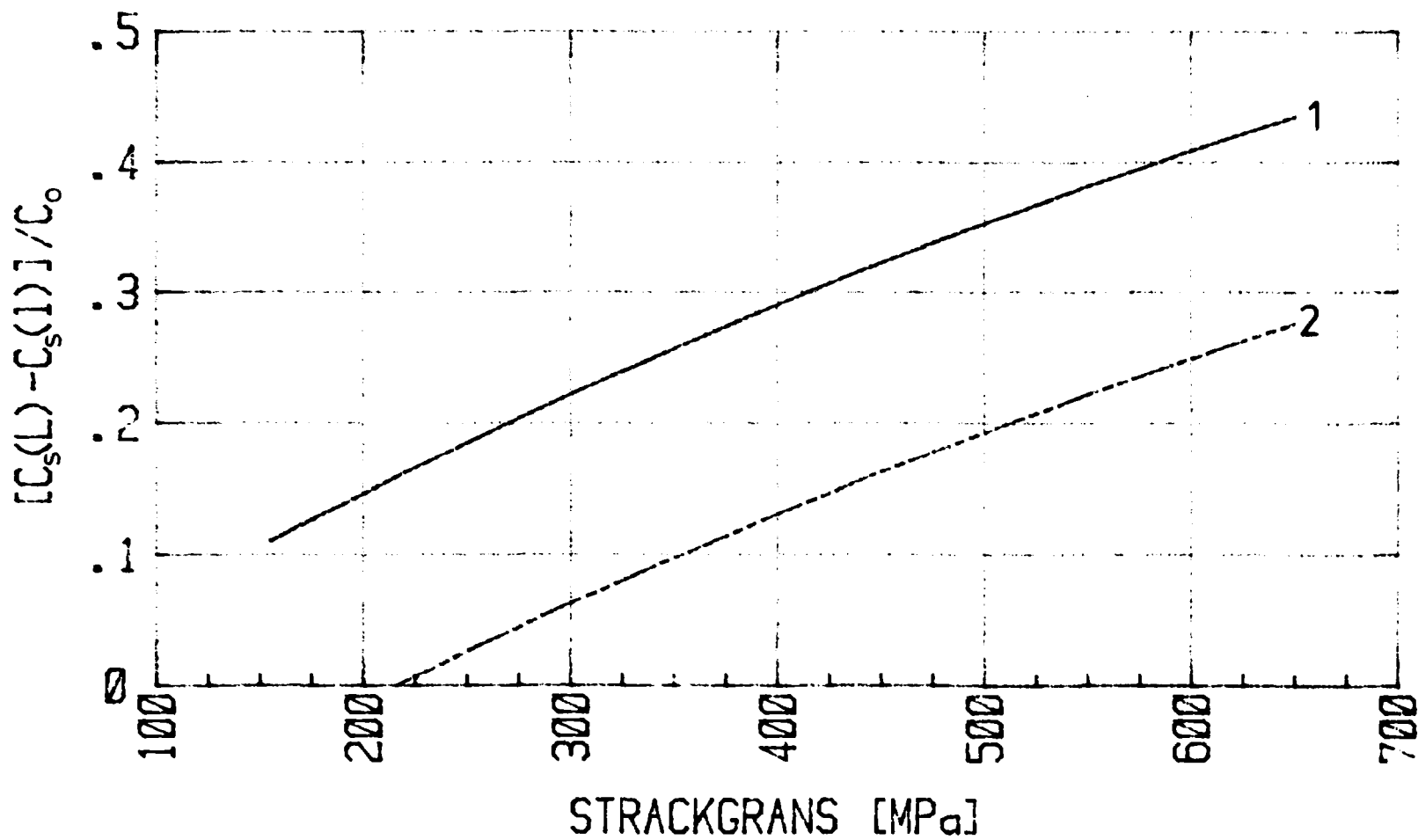
Tabell 1

Primärdata

Stav nr	Typ	Last	Anvisningsdjup	Kl vid start	Propagering	Kl vid medelsprickdjup	Tillväxt genom HIDC	Tid	Tillväxthastighet
		N	m	MN·m ^{-3/2}	m	MN·m ^{-3/2}	ja/nej	S	m/s
A1	Obestrålad, hög vätehalt	441	6.2·10 ⁻³	7.4	4.3·10 ⁻³	14.4	nej	3.45·10 ⁶	1.25·10 ⁻⁹
A2	"-	736	6.0·10 ⁻³	11.9	-	-	-	3.45·10 ⁶	-
A3	"-	1 030	6.0·10 ⁻³	16.6	-	-	-	3.45·10 ⁶	-
A4	"-	1 422	6.0·10 ⁻³	23.0	5.2·10 ⁻³	51.2	nej	3.44·10 ⁶	1.51·10 ⁻⁹
A5	"-	1 766	6.2·10 ⁻³	29.9	3.9·10 ⁻³	53.4	nej	3.44·10 ⁶	1.13·10 ⁻⁹
B3	Bestrålad, låg vätehalt	441	7.5·10 ⁻³	10.6	-	-	-	3.44·10 ⁶	-
B1	"-	736	6.5·10 ⁻³	13.4	-	-	-	3.45·10 ⁶	-
B4	"-	1 030	7.5·10 ⁻³	24.9	-	-	-	3.43·10 ⁶	-
B2	"-	1 422	7.5·10 ⁻³	34.4	3.5·10 ⁻³	67.5	nej	0.93·10 ⁶	3.76·10 ⁻⁹
B5	"-	1 766	6.5·10 ⁻³	32.2	4.0·10 ⁻³	61.1	nej	2.03·10 ⁶	1.97·10 ⁻⁹
C4	Bestrålad, hög vätehalt	294	6.0·10 ⁻³	4.7	-	-	-	3.45·10 ⁶	-
C1	"-	441	6.5·10 ⁻³	8.0	-	-	-	3.45·10 ⁶	-
C7	"-	589	6.5·10 ⁻³	10.7	-	-	-	4.14·10 ⁶	-
C5	"-	736	6.2·10 ⁻³	12.4	-	-	-	3.45·10 ⁶	-
C2	"-	883	7.0·10 ⁻³	18.4	-	-	-	3.45·10 ⁶	-

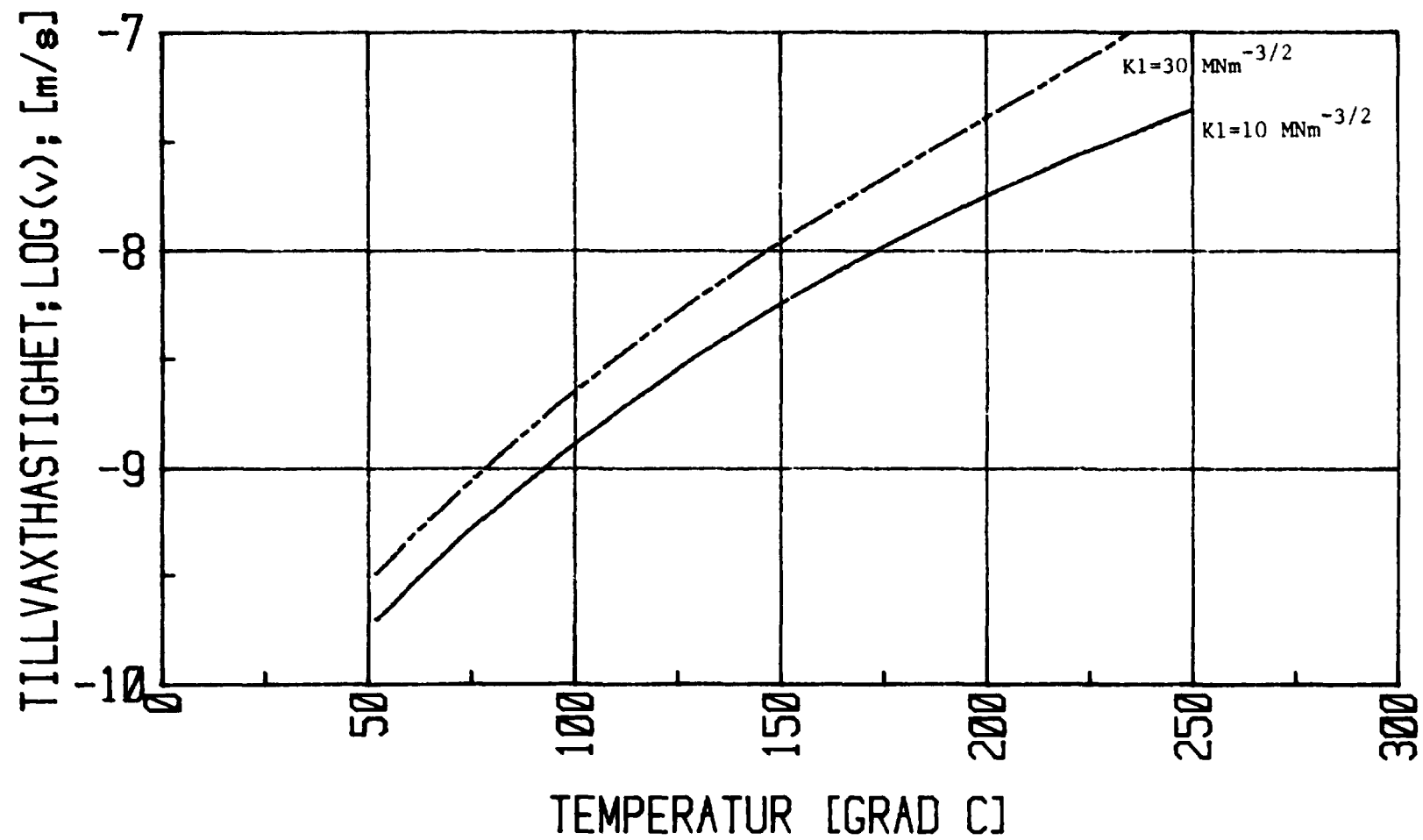
Tabell 1 forts

Stav nr	Typ	Last	Anvisningsdjup	K1 vid start	Propagering	K1 vid medelsprickdjup	Tillväxt genom HIDC	Tid	Tillväxthastighet
		N	m	MN·m ^{-3/2}	m	MN·m ^{-3/2}	ja/nej	S	m/s
C8	Bestrålad, hög vätehalt	1 030	6.5·10 ⁻³	18.8	1.5·10 ⁻³	23.0	nej	4.15·10 ⁶	0.36·10 ⁻⁹
C6	"	1 177	6.0·10 ⁻³	19.0	5.5·10 ⁻³	45.1	nej	3.07·10 ⁶	1.79·10 ⁻⁹
C3	"	1 422	6.0·10 ⁻³	23.0	5.0·10 ⁻³	49.2	nej	3.10·10 ⁶	1.61·10 ⁻⁹
C9	"	1 766	6.0·10 ⁻³	28.6	5.5·10 ⁻³	67.6	nej	0.74·10 ⁶	7.43·10 ⁻⁹
A6	Värmebehandlad	441	6.5·10 ⁻³	8.0	-	-	-	4.21·10 ⁶	-
B6	"	441	6.5·10 ⁻³	8.0	-	-	-	4.21·10 ⁶	-
C10	"	441	6.5·10 ⁻³	8.0	-	-	-	4.21·10 ⁶	-
C11	"	589	6.5·10 ⁻³	10.7	-	-	-	4.21·10 ⁶	-
C12	"	736	6.0·10 ⁻³	11.9	-	-	-	4.21·10 ⁶	-



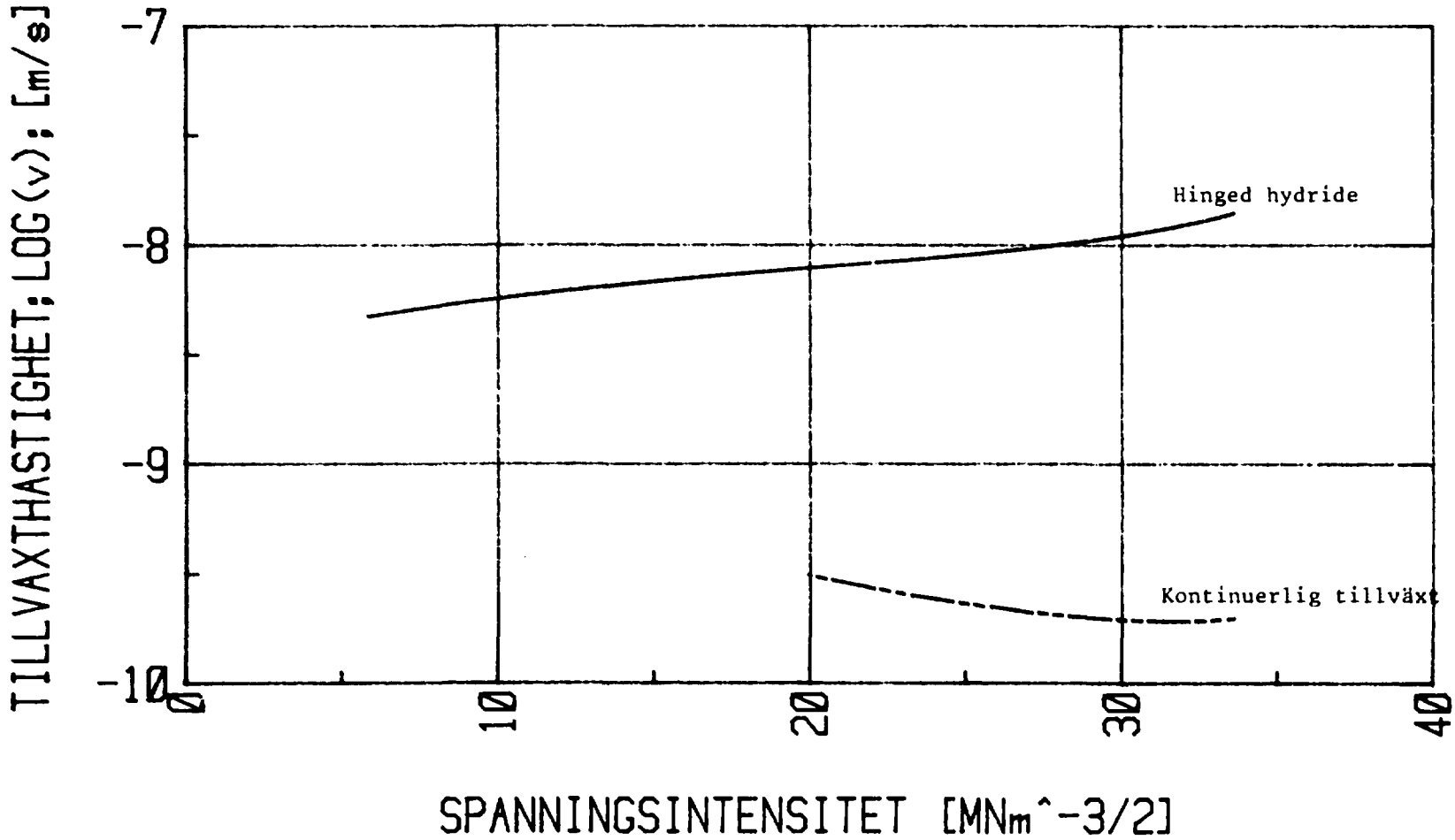
Figur B.1

Skillnaden i jämviktskoncentration för väte vid L respektive l. Olika K_I/\sqrt{L} -kvot. Kurva 1 har 0.2 och kurva 2 har 1.5. Temperatur 150°C.



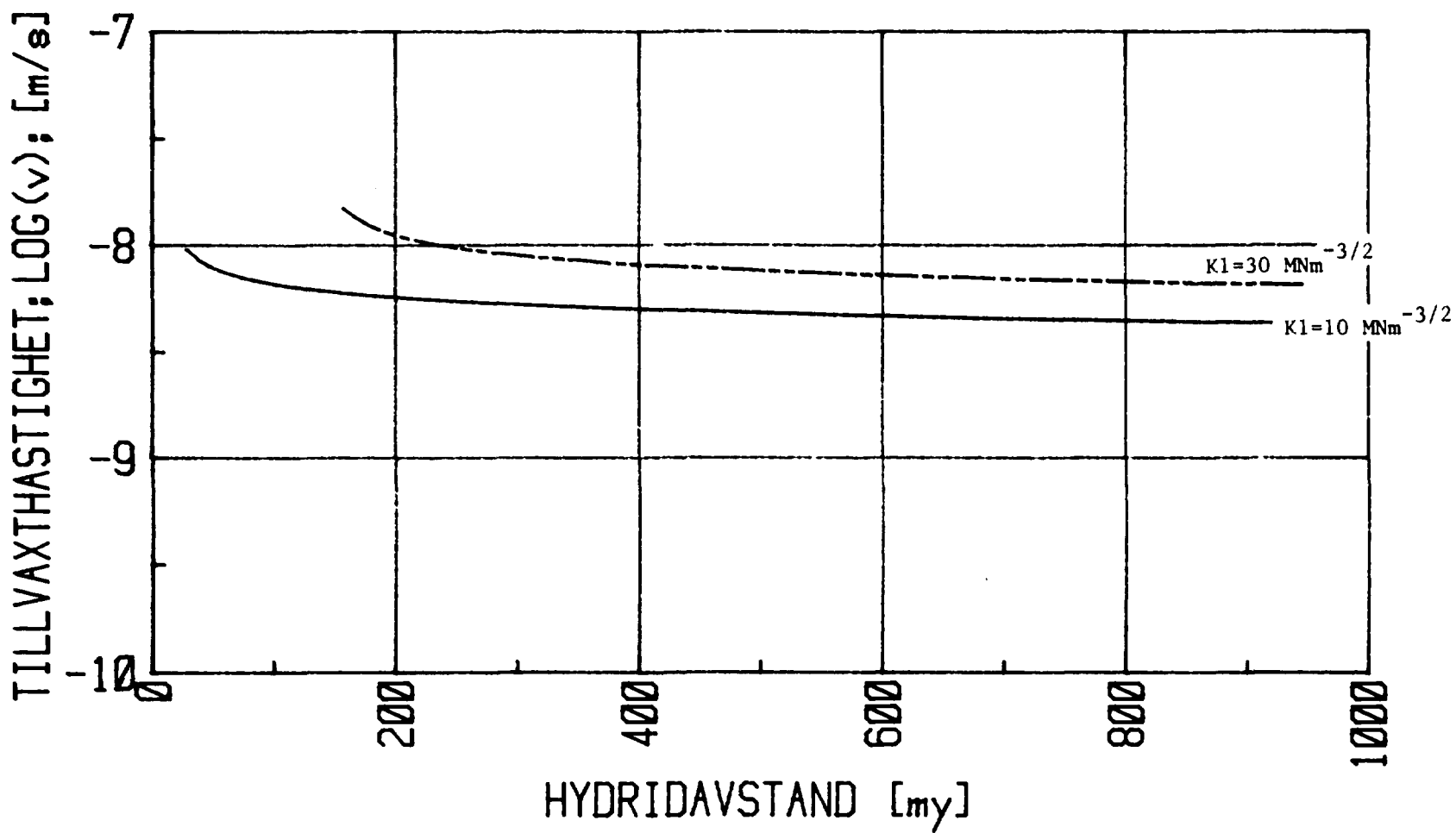
Figur B.2

Temperaturberoendet hos tillväxthastigheten enligt hinged hydride modellen. Sträckgränsen antas minska med 0.79 MPa per grad C temperaturökning (9).



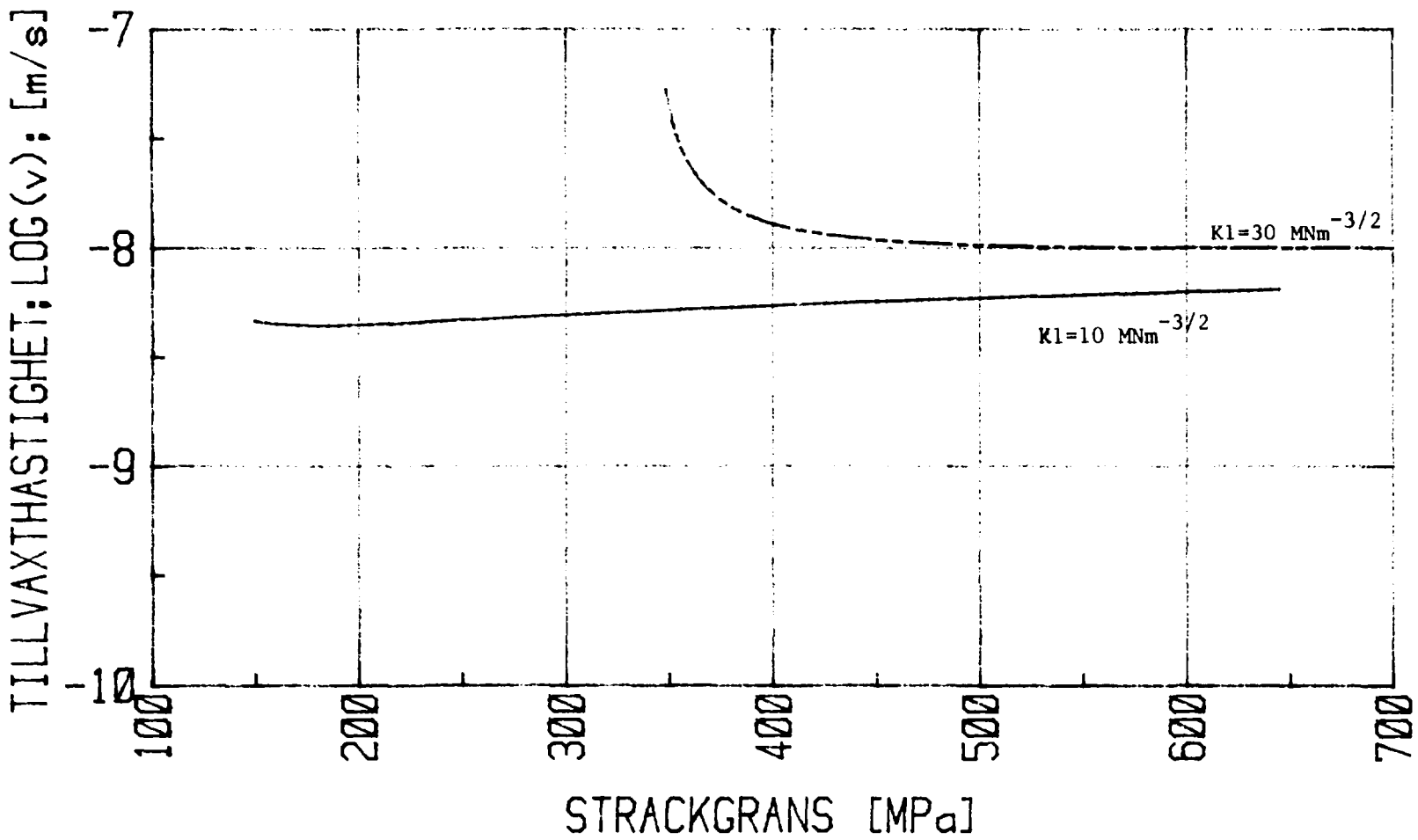
Figur B.3

Tillväxthastighetens spänningsintensitetsberoende enligt båda beräkningsmodellerna.



Figur B.4

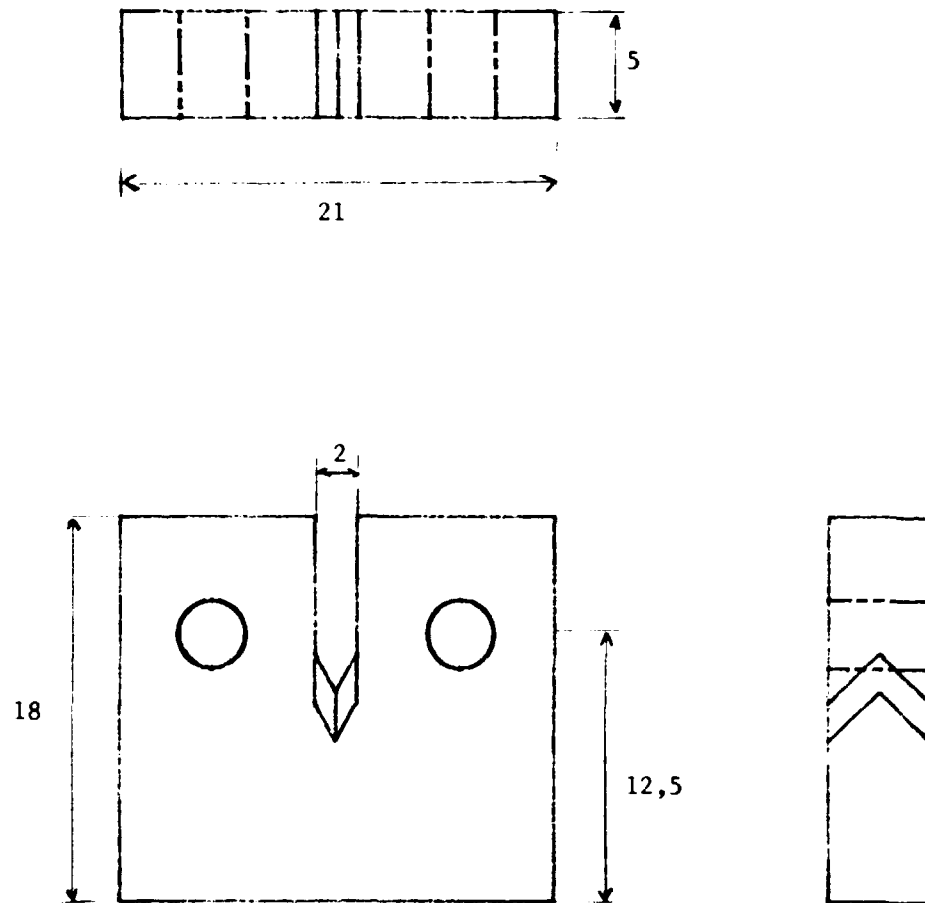
Hydridavståndets inverkan på propageringshastigheten enligt hinged hydride modellen.



Figur B.5

Sträckgränsens inverkan på spricktillväxthastigheten enligt hinged hydride modellen.

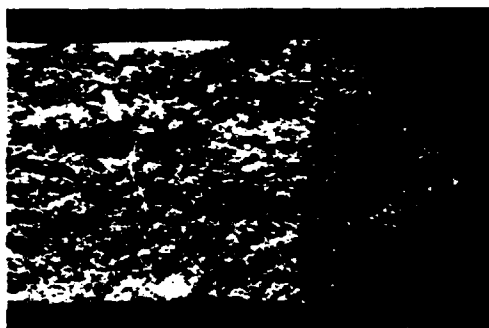
CT-PROVSTAV



Figur B.6a

Dimensioner hos de CT-provstavar som använts.

1981-08-20



c | b | a

Figur B.6b

Utseendet hos en provstav efter det att den brutits upp (x6).

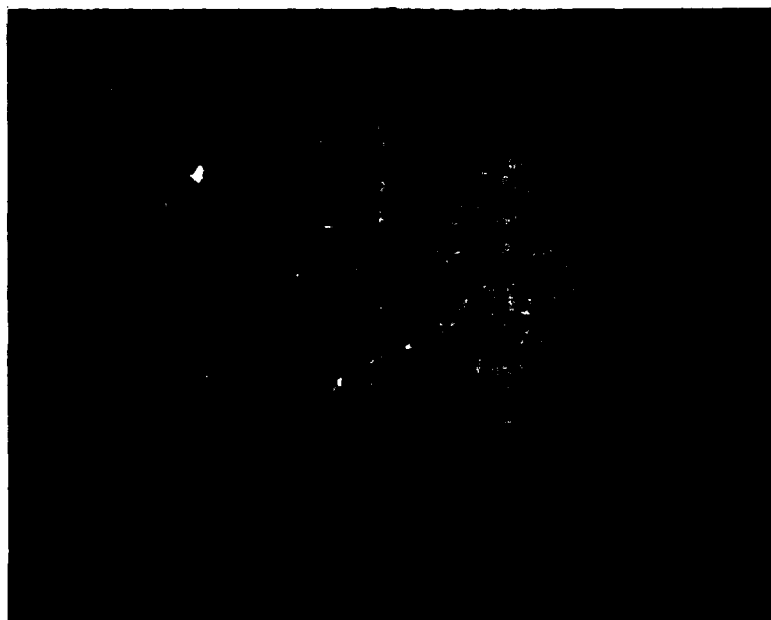
a: utmattningsspricka
b: propagering under last
c: restbrott

1981-08-20



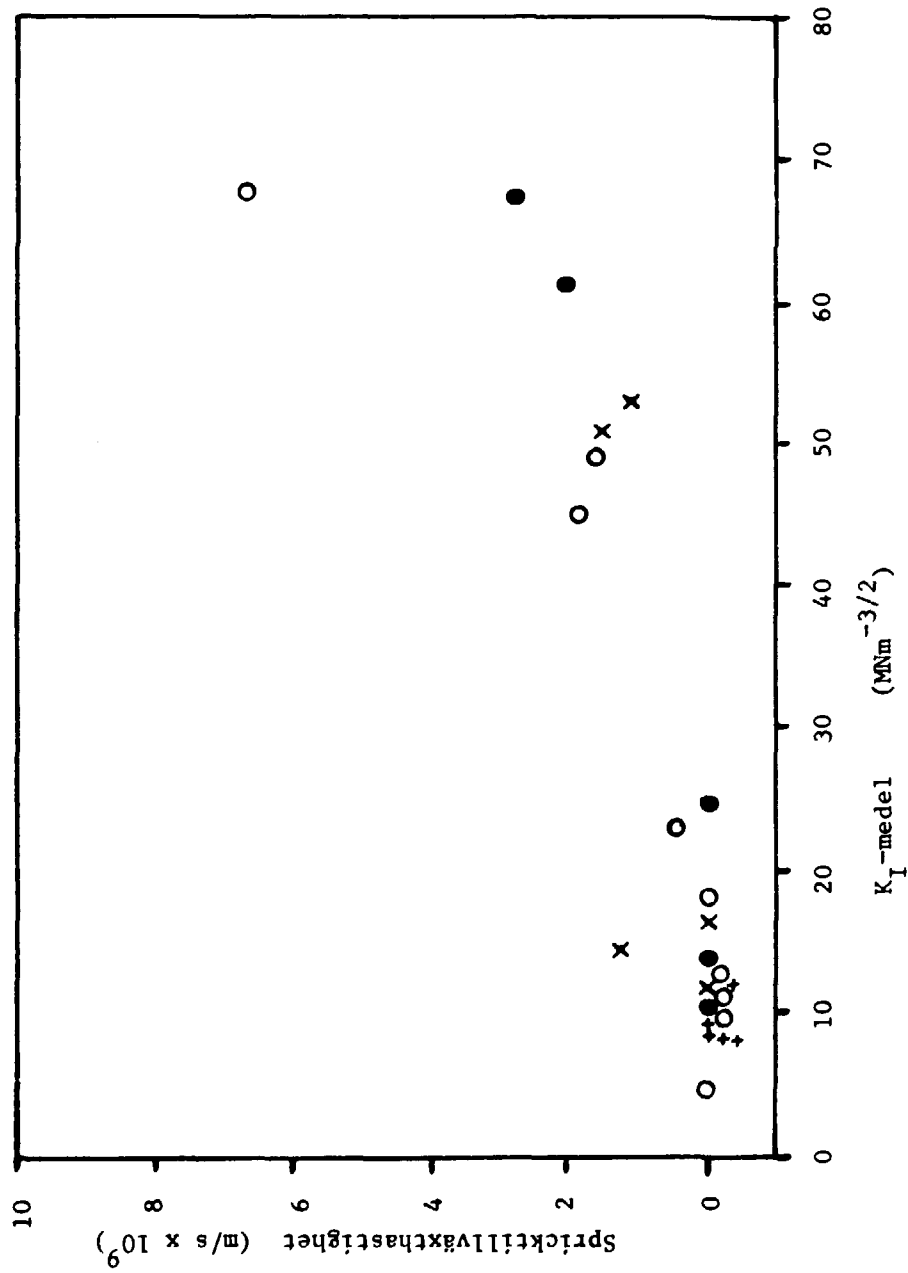
Figur B.7

Hydridfördelning för bestrålat prov med normal vätehalt (B7). Obelastat (x100).

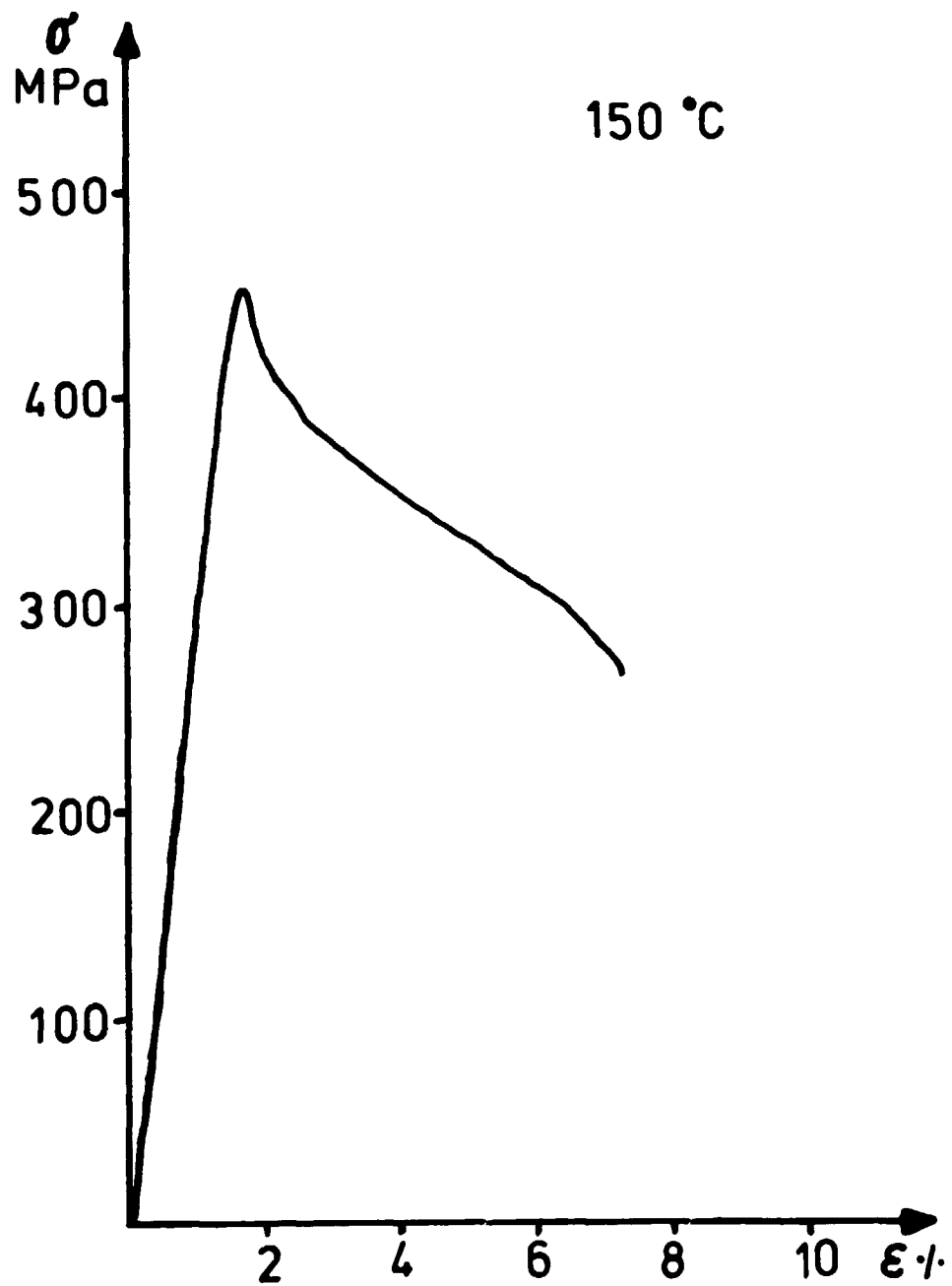


Figur B.8

Hydridstruktur för bestrålat prov med 160 ppm väte (C13). Obelastat (x100).



Figur B.9
Sprickpropagering under belastningen.



Figur B.10

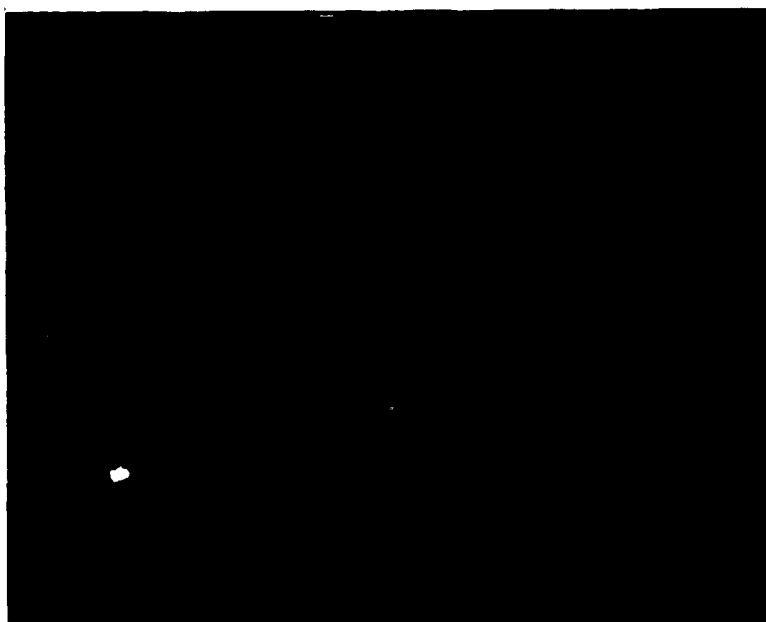
Dragprovkurva för Zircaloy-2 vid 150°C bestrålad till en dos av $2.6 \cdot 10^{24}$ n/m² ($E > 0.1$ MeV).

1981-08-20



Figur B.11

Spricka A1. Obestrålat, hög vätehalt. K1-start =
= $7.4 \text{ MN m}^{-3/2}$. Propageringshastighet $1.25 \cdot 10^{-9}$
m/s. x100.



Figur B.12

Spricka A1. Data se Figur B.11. x500.

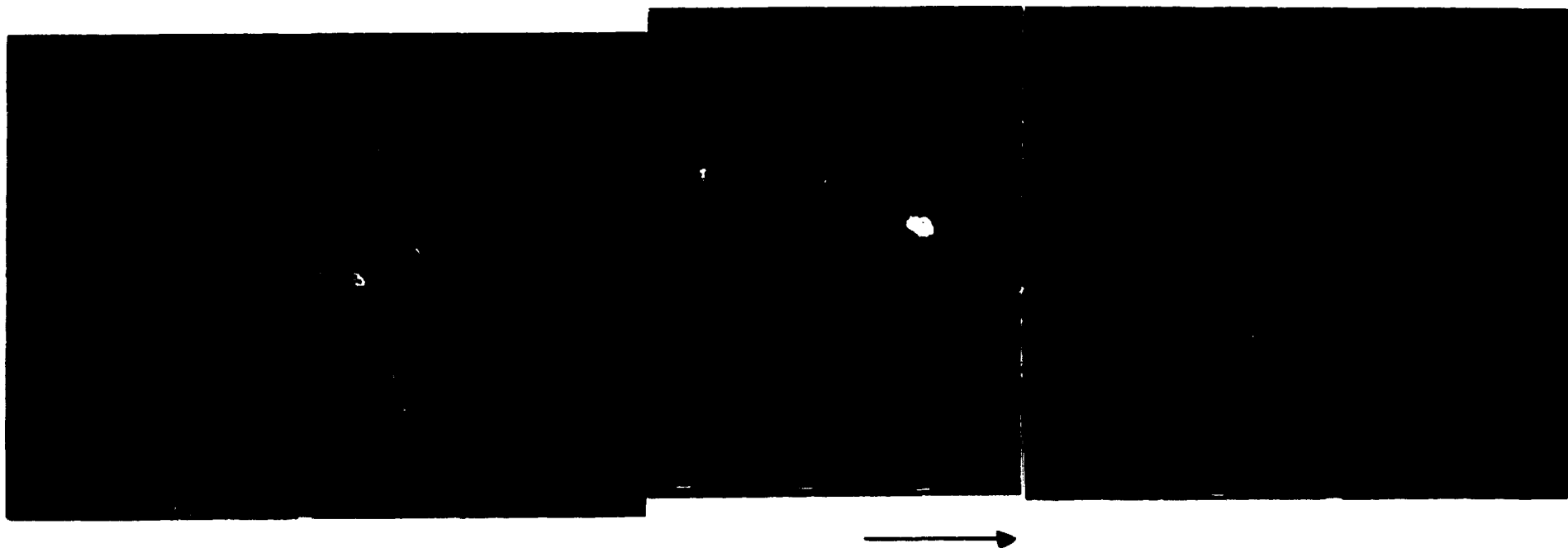
1981-08-20

Figur B.13

Spricka A4. Obestrålat, hög vätehalt. K_I-start =
 = 23.0 MN m^{-3/2}. Sprickpropageringshastighet
 1.51·10⁻⁹ m/s. x500.

Figur B.14

Spricka A5. Obestrålat, hög vätehalt. K_I-start =
 = 29.9 MN m^{-3/2}. Propageringshastighet 1.13·10⁻⁹
 m/s. x500.



Figur B.15

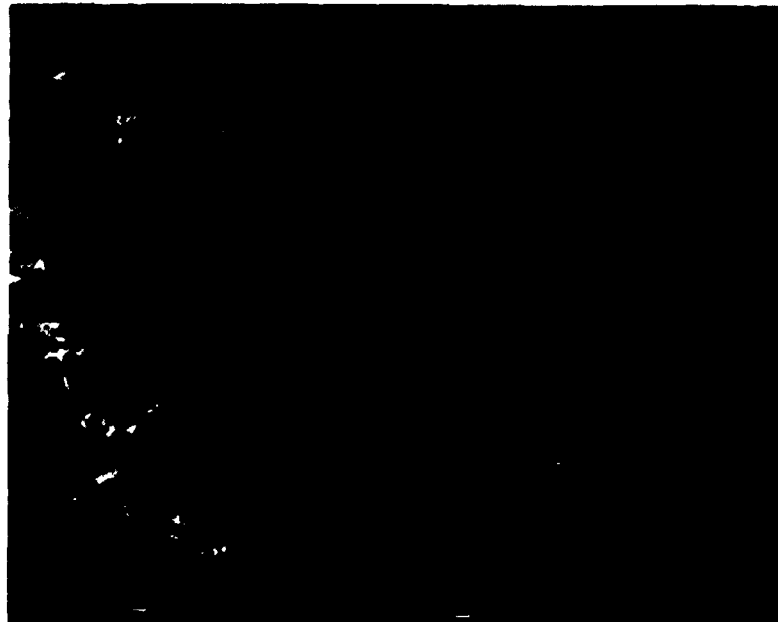
Spricka B2. Bestrålat, låg vätehalt. K_I-start = $34.4 \text{ MN m}^{-3/2}$. Sprickpropageringshastighet $3.76 \cdot 10^{-9} \text{ m/s}$. x200.

1981-08-20



Figur B.16

Spricka B2. Data se Figur 15. x50.



Figur B.17

Spricka B2. Data se Figur 15. x500.

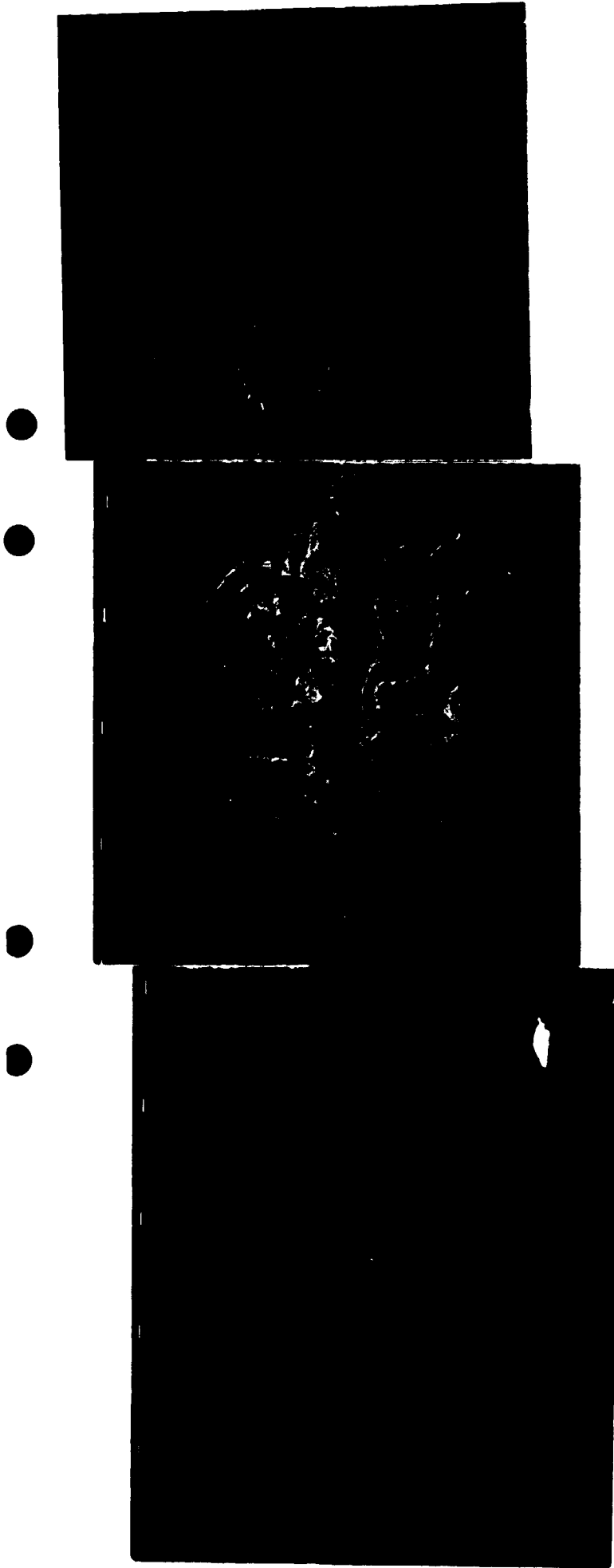
1981-08-20



Figur B.18

Spricka B2. Data se Figur 15. x500.

1981-08-20



Figur B.19

Spricka 63. Bestrålad, hög vätehalt. K1-start = $23.0 \text{ MN m}^{-3/2}$. Sprickpropageringshastighet $1.61 \cdot 10^{-10} \text{ m/s}$. x200.

1981-08-20



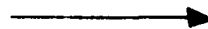
Figur B.20

Spricka C3. Data se Figur B.19. x750.



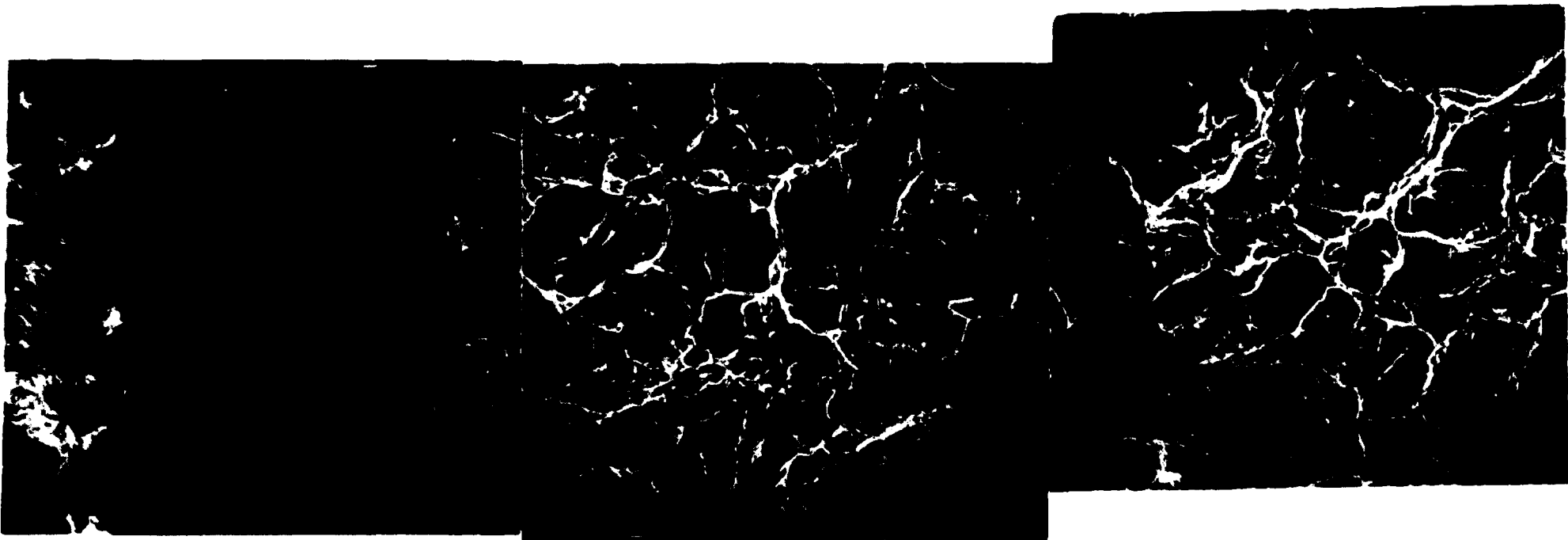
Figur B.21

Spricka C3. Data se Figur B.19. x750. Provet
tiltat 45°.



Figur B.22

Spricka G9. Bestrålat hög vätehalt. K1-start = $28.6 \text{ MN m}^{-3/2}$. Sprickpropageringshastighet $7.45 \cdot 10^{-9} \text{ m/s}$. x200.



Figur B.23

Spricka C9. Data se Figur B.22. x750.

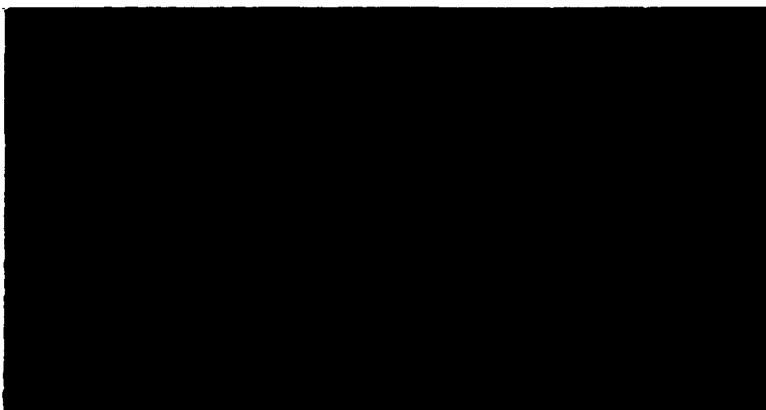
1981-08-20



Figur B.24

Spricka C9. Data se Figur B.22. x1 500.

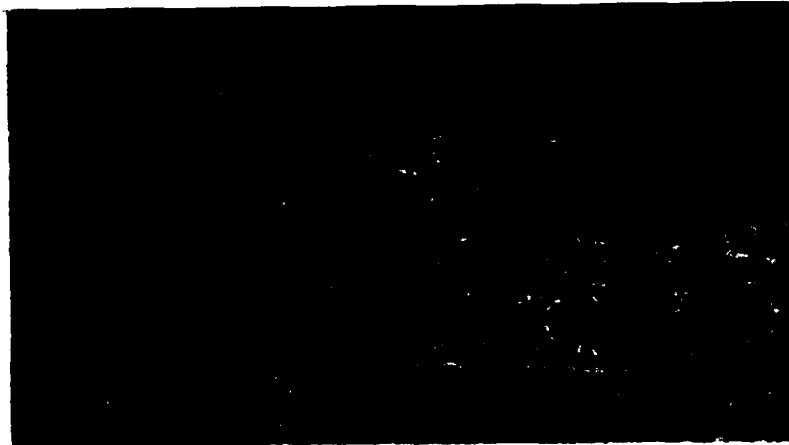
1981-08-20



Figur B.25

Hydridorientering invid sprickan på belastad prov - C3. x200.

1981-08-20



Figur B.26

Hydridernas orientering hos prov C9 nära sprickan.
Efter belastning x200.



STUDSVIK/K 4-81/45

VÄTENDUCERAT FÖRDRÖJT BROTT I BESTRALAD ZIRCALOY-2

Kjell Norring, Evert Helstrand

Studsvik

Studsvik Energiteknik AB S-61182 NYKÖPING
SWEDEN Telefon 0155-800 00 Telex 64013 studs s