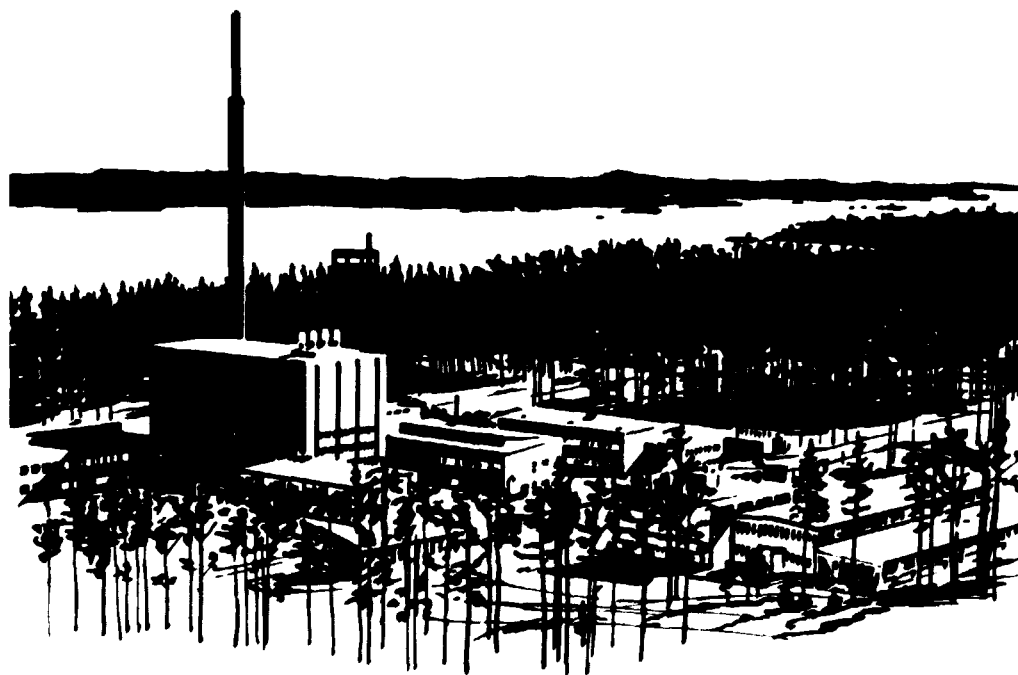


1200819

INVERKAN AV TEXTUR, VÄRMEBE- HANDLING OCH TÖJNINGSHASTIGHET PÅ SPÄNNINGSKORROSIONSSPRICK- NING I BESTRALAD ZIRCALOY

Slutrapport KI/STUDSVIK-B4/Zr-Brottkriterier

Kjell Pettersson
Walter Stany
Evert Hellstrand



1979-03-06

KI/STUDSVIK - B4/Zr-Brottkriterier

Kjell Pettersson
Walter Stany
Evert Hellstrand

77/78 Offert MZ-322-77
77/78 Offert MZ-327-77
78/79 Offert MZ-287-78

INVERKAN AV TEXTUR, VÄRMEBEHANDLING OCH TÖJNINGSHASTIGHET
PÅ SPÄNNINGSKORROSIONSPRICKNING I BESTRÅLAD ZIRCALOY.
Slutrapport KI/STUDSVIK - B4/Zr-Brottkriterier.

HUVUDINNEHÅLL

Bestrålad Zircaloy med olika texturer och värmebehandlingar har spänningskorrosionsprovats liksom bestrålade prover av Zr-1 Nb, ren Zr och betasläckt Zircaloy. Texturen har mycket liten inverkan på spänningskorrosionskänsligheten. Avspänningsglödgad Zircaloy är även efter bestrålning känsligare för spänningskorrosion än rekristalliserad Zircaloy. Zr-1 Nb och betasläckt Zircaloy är väsentligt känsligare för spänningskorrosion än varianterna med olika texturer. Allmänt gäller att Zircaloy efter bestrålning är känsligt för spänningskorrosion vid spänningar långt under sträckgränsen. Under provning vid konstant miljö minskar brottspänningen med töjningshastigheten. Jämförs funna data med data för obestrålad Zircaloy kan man dra slutsatsen att sprickutbredningen är väsentligt snabbare i bestrålad Zircaloy än i obestrålad Zircaloy. Något enkelt brottkriterium för bestrålad Zircaloy finns inte. Däremot kan man vid en viss spänning och töjningshastighet ge en sannolikhet för att brott ska ha inträffat innan denna spänning nås vid konstant töjningshastighet.

Projektet är 4 månader försenat jämfört med i senaste offert given tidplan huvudsakligen beroende på stor arbetsbelastning på projektledaren.

Godkänd av

Kjell Pettersson

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

	<u>Sid</u>
1. INLEDNING	1
2. OBESTRÅLAD ZIRCALOY	2
2.1 Inverkan av värmebehandlings- tillstånd	2
2.2 Inverkan av textur	5
2.3 Inverkan av töjningshastighet	5
2.4 Brottkriterier	6
3. BESTRÅLAT MATERIAL	6
4. EXPERIMENTELLA DETALJER	7
4.1 Material	7
4.2 Bestrålning	8
4.3 Provningsmetod	8
5. RESULTAT	10
5.1 Provningsresultat	10
5.2 Undersökning av brottytor med svepelektronmikroskop	13
6. DISKUSSION	15
6.1 Inverkan av textur och värme- behandling	15
6.2 Brottkriterier för bestrålad Zircaloy	16
6.3 Tillämpning på bränslestavar	19
6.4 Kan resultaten analyseras utifrån en initierings- sprickutbrednings- modell?	21
7. SLUTSATSER	24
REFERENSER	25
BILAGA A: Tabell A.1	
Tabell A.2	
Fig A1 - A16	

1 INLEDNING

Det är numera få som tvivlar på att kapslingsbrott i samband med effekthöjningar är spänningskorrosionsbrott orsakade av en eller flera mot Zircaloy aggressiva fissionsprodukter. Samtidigt som allt fler fissionsprodukter visats kunna orsaka spänningskorrosionsbrott (1 - 3) har andra undersökningar visat att det är omöjligt att på rent mekanisk väg åstadkomma sprickor med samma utseende som de kapslingssprickor som observerats i bränslestavar efter effekthöjningar, trots att försök gjorts att klyva Zircaloy under spänningskoncentrationer både vid låga temperaturer (4) och efter bestrålning (5). Den fissionsprodukt som i första hand är misstänkt är jod men även cesium med vissa föreningar (2) eller kadmium (3) är tänkbara. Möjligen kan man hävda att det fraktografiska underlag som finns (2) talar mot att cesium orsakar kapslingsbrott. Å andra sidan finns andra fissionsprodukter som är potentiellt aggressiva, men inte undersökts i någon större omfattning, exempelvis tellur och silver.

Skälen till att jod valts till miljön för denna undersökning av inverkan av textur, värmebehandling och töjningshastighet på spänningskorrosionssprickning i bestrålad Zircaloy är flera. De starkaste skälen är att försöken blir lätta att utföra och att jod är en ymnigt förekommande fissionsprodukt som bör vara den starkast misstänkta av förekommande aggressiva fissionsprodukter i bränslet. För de faktorer som undersökningen omfattar är det också ett rimligt antagande att det inte innebär några större begränsningar i försökens värde att resultat föreligger för bara en miljö. Spänningskorrosionskänslighetens beroende av såväl textur, värmebehandling som töjningshastighet bör vara principiellt likartat oberoende av den korrosiva miljön.

2 OBESTRÅLAD ZIRCALOY

2.1 Inverkan av värmebehandlingstillstånd

Värmebehandlingstillståndets inverkan på spänningskorrosionskänsligheten i jodmiljö vid ca 300°C är delvis beroende på den provmetod som använts. Schematiskt kan man indela de provmetoder som använts i tre grupper:

konstant deformation

konstant deformationshastighet

konstant spänning

Belastningsfallet för bränslekapsling kan närmast beskrivas som konstant deformationshastighet följt av en tidsperiod vid nästan konstant deformation (UO₂-kryp bör i princip minska den pålagda deformationen med tiden). Valet av provmetod kan i viss mån vara beroende på syftet med provningen, men torde oftast vara beroende på de resurser som finns tillgängliga i laboratoriet.

En annan indelning av provmetoder är om belastningsfallet är enaxligt eller tvåaxligt. Så tidigt som 1965 rapporterade Rosenbaum (6) att det var omöjligt att erhålla spänningskorrosionsbrott i enaxligt belastad Zircaloytråd medan rörprover utsatta för ett odefinierat tvåaxligt spänningstillstånd erhöll sprickor i jodatmosfär. Även Östberg och Attermo (7) gjorde erfarenheten att det inte var möjligt att få spänningskorrosionsbrott vid enaxlig belastning. Några andra publicerade erfarenheter av enaxliga provningar finns inte men man torde kunna utgå från att enaxliga provningar utan framgång utförts i ett flertal laboratorier och därför inte rapporterats. Det verkar således som om det är nödvändigt med tvåaxliga belastningar för att få spänningskorrosionsbrott i Zircaloy vid ca 300°C.

Exempel på belastningsfall med konstant deformation är vidgning av ringar med en termiskt expanderande plugg (6, 8) och vidgning av uppslitsade ringar med hjälp av en kil (9). I det förra fallet blir belastningen tvåaxlig genom att friktionen mellan plugg och ring ger en axiell dragspänning i ringen. I det senare fallet blir belastningen tvåaxlig genom att det råder ett plant töjnings-tillstånd i den del av ringen som är motsatt slitsen och som också är den högst belastade delen av ringen (10). Med hjälp av termisk expansion blir med nödvändighet endast små deformationer möjliga. Vid vidgning av slitsad ring måste av praktiska skäl deformationen eller belastningen genomföras före själva exponeringen i temperatur och miljö. Därför blir det i båda fallen fråga om endast obetydliga plastiska deformationer och en viss spänningsrelaxation äger rum under provningen. Erfarenheterna från dessa provningstyper visar att endast kallbearbetade eller kallbearbetade och avspänningsglödgade material är känsliga för spänningskorrosion, medan fullständigt rekristallisationsglödgade material är okänsliga.

Försök vid konstant spänning har huvudsakligen gjorts genom att trycksätta rörprover med inertgas med tillsatser av jod (11, 12). Både rekristalliserad, avspänningsglögdad och kallbearbetad Zircaloy är spänningskorrosionskänslig i denna typ av provning. I allmänhet observeras ett tröskelvärde för spänningen under vilket spänningskorrosionsbrott ej erhålles. Vid mycket höga spänningar blir brottet mekaniskt. Tröskelvärdet är lägre ju mjukare materialet är. Tröskelvärdets temperaturberoende är emellertid sådant att det inte direkt följer sträck- eller brottgränsens temperaturberoende (11). Man kan således inte dra slutsatsen att tröskelvärdet uppstår enbart genom att plastisk deformation krävs för att initiera en spänningskorrosionspricka även om detta förmodligen är en del av förklaringen. Provningen vid konstant spänning innebär att proverna kryper vid de spänningar som ger spänningskorrosionsbrott.

För rekristalliserat material är kryptöjningarna 3 - 5 % och för hårdare material är kryptöjningarna 1 - 2 % vid provningsbetingelser som ger spänningskorrosionsbrott. Det är således först efter ett visst deformationshårdnande vid 300°C som rekristallisationsglödgat material blir känsligt för spänningskorrosion.

Rapporterade försök med konstant deformationshastighet har i huvudsak utförts på två olika sätt. Metoden med dragprovning av plantöjningsprover har redovisats i den tidigare rapporten för obestrålat material i denna undersökning (13). Den andra metoden är ett simulerat bränsleexpansionsprov där en annulär kuts av keramiskt material vidgas mot kapslingens insida. Vid vidgningen spricker kutsen och man får över kutssprickorna töjningskoncentrationer liknande dem som kan väntas i en bränslestav. I princip skulle man alltså direkt kunna simulera förloppet vid en effekthöjning men i praktiken körs provet med konstant hastighet tills brott erhålles på kapslingsprovet. Provet används mest för att sortera upp olika materials spänningskorrosionskänslighet och för att pröva olika motmedel mot spänningskorrosion. Det har också använts för att studera inverkan av töjningshastigheten på spänningskorrosionsförloppet (14). En nackdel med provmetoden är att töjningshastigheten är odefinierad över kutssprickorna och även medeltöjningshastigheten blir i praktiken beroende av antalet sprickor som bildas i den keramiska kutsen. Värmebehandlings inverkan på spänningskorrosionskänsligheten blir densamma som för provning vid konstant spänning. Rekristalliserat material är känsligt men spricker först vid högre töjningar än kallbearbetat och avspänningsglödgat material. Dock sker sprickningen vid något lägre sanna spänningar i det mjukare materialet än den sker i det hårdare materialet.

2.2 Inverkan av textur

Den enda systematiska studien av inverkan av textur på spänningskorrosionskänsligheten hos obestrålad Zircaloy har rapporterats tidigare inom detta projekt (13). Slutsatsen blev att för texturer mellan 0 och 30° är 0°-texturen något okänsligare än texturerna 15° och 30°. För 45° och 65° spelade det under de provningsbetingelser som rådde i undersökningen ingen roll om provningen gjordes i jodatmosfär eller inte. Man får emellertid av detta inte dra slutsatsen att 45° och 65°-texturer allmänt är okänsliga för jodspänningskorrosion. Tvärtom har mindre systematiskt upplagda undersökningar av hur rör med olika texturer uppträder i jodatmosfär visat att texturen i dessa fall inte har inverkat på spänningskorrosionskänsligheten (9). Klyvplanens orientering nära basplanet vid spänningskorrosionsbrott i Zircaloy (15) är ytterligare en faktor som bör bidra till att texturer med höga baspolvinklar kan vara känsliga för spänningskorrosion.

2.3 Inverkan av töjningshastighet

Den enda systematiska undersökningen av hur töjningshastigheten inverkar på spänningskorrosionskänsligheten har gjorts av Wood et al (14). Undersökningen var en simulerad bränsleexpansionsprovning vilket innebar att töjningshastigheten vid brottstället är odefinierad. Inverkan av medeltöjningshastigheter undersöktes över flera dekader mellan 10^{-7} s^{-1} och 10^{-3} s^{-1} . Spänningskorrosionsbrott erhöles för töjningshastigheter lägre än 10^{-4} s^{-1} . Någon gräns under vilken spänningskorrosionsbrott inte erhålles kunde inte påvisas. Töjningskoncentrationen över sprickorna är sådan att töjningshastigheten över dessa är ungefär en faktor 2 högre än medeltöjningshastigheten (16).

2.4 Brottkriterier

För att på ett enkelt sätt förstå kapslings-skador som uppstår vid effekthöjningar kan det vara ändamålsenligt med ett brottkriterium som förutsäger att brott på kapslingen fås när en viss spänningsnivå uppnås. Det finns ett visst underlag för att hävda att den nivån är 300 MPa för rekristalliserat material (17). Ovan relaterade erfarenheter ger emellertid anledning misstänka att spänningsnivån kan vara beroende av exempelvis töjningshastigheten och kanske också texturen. Med kännedom om textur, värmebehandling och ramphastighet samt den av dessa faktorer beroende brottspänningen skulle det då vara möjligt att förutsäga om och när vid en effekthöjning kapslingsbrott inträffar. Detta var idén bakom denna undersökning men utifrån en alternativ syn på spänningskorrosionsbrott, nämligen att brottet kan indelas i en initierings och utbredningsfas, kan resultaten ur brottkriteriesynpunkt ha ett begränsat värde. Under propageringsfasen styrs sprickutbredningen av spänningstillståndet vid sprickspetsen och detta bestäms av både spänning och sprickdjup genom en så kallad spänningsintensitetsfaktor. Bland annat har det visats att en spricka kan breda ut sig vid en spänning av ca 140 MPa vilket är väsentligt under ovan angivna 300 MPa (18). Det är emellertid möjligt att initieringsfasen kräver en viss spänning vilket kan resultera i ett brottkriterium av typen "kritisk spänning för brott".

3 BESTRÅLAT MATERIAL

Både Wood (19) och Garlick (20) har gjort konstanttöjningsprover på bestrålat material. Deras resultat visar att rekristalliserat material som i den typen av provning är okänsligt för spänningskorrosion i obestrålat tillstånd blir känsligt efter bestrålning till en snabbneutrondos av mer än ca $8 \cdot 10^{23} \text{ n/m}^2$ ($E > 1 \text{ MeV}$). Detta motsvarar en sträckgräns av ca 330 MPa (21) och stämmer alltså relativt väl överens med det tröskelvärde som angivits av Videm (17). Cubicciotti och

Jones (22) har rapporterat resultat från rör provade med inre övertryck där avspänningsglödgade rör efter bestrålning till ca $3 \cdot 10^{25}$ n/m² är spänningskorrosionskänsliga ned till en spänning av 200 MPa. Lee och Adamson (23) och Adamson (24) har rapporterat spänningskorrosionsresultat från bestrålade plantöjningsprover. I flera fall resulterade provningarna i spänningskorrosionsbrott innan sträckgränsen för materialet uppnåtts. Brottspänningen var dock i dessa fall över 400 MPa.

4 EXPERIMENTELLA DETALJER

4.1 Material

Undersökningen omfattade ett flertal materialvarianter och texturer. Huvuddelen av undersökningen - provning av spänningskorrosionskänsligheten som funktion av töjningshastigheten - utfördes på Zircaloy-4 provstavar med fem olika texturer, 0, 15°, 30°, 45° och 65°, och två olika värmebehandlingar, 510° och 575°C. Dessa finns närmare beskrivna i den tidigare rapporten över provning av obestrålat material (13). Dessutom provades spänningskorrosionskänsligheten hos rent zirkonium, rysk Zr-1Nb och betasläckt Zircaloy. Provstavar av rent zirkonium framställdes ur en "crystal bar" genom omsmältning, valsning och rekristallisation. Syrehalten var ej känd men ligger normalt på högst högst ca 100 ppm i "crystal bar" zirkonium. Det är osannolikt att någon syreupptagning av betydelse skedde under framställningen. Däremot kan en viss kontamination av kol ha inträffat genom att smältningen gjordes i en grafitdegel. Även det ryska Zr-1 Nb-materialet måste omsmältas eftersom det endast fanns tillgängligt i form av rör. Syrehalten i detta material var ca 500 ppm. I övrigt följdes samma tillverkningschema som för "crystal bar" zirkonium. Resultande textur är ej känd men bör ligga mellan 30 och 45°. I båda fallen fanns bara en mycket begränsad provmängd tillgänglig och innan provstavstillverkning måste provmaterialet kompletteras genom påsvetsning av ändbitar av Zircaloy-2.

Det betasläckta materialet värmebehandlades 10 min vid 1050°C varefter det fick svalna i luft. Provtillverkningen gjordes efter värmebehandlingen varför eventuella syre- och kvävekontaminerade ytskikt har bearbetats bort.

Provkonstruktionen var densamma som i den tidigare undersökningen (13) och framgår av Fig A.1.

4.2 Bestrålning

Sammanlagt 100 plantöjningsprov ur serien med olika textur och värmebehandling bestrålades i hetvattenslinga i R2 till en snabbneutrodos av $2.5 \cdot 10^{24}$ n/m² (E > 1 MeV) vid en temperatur av 325°C. Neutrodosen bestämdes med monitorering. Proverna ur serien med olika material bestrålades till doser varierande mellan 1.5 och $2.5 \cdot 10^{24}$ n/m² (E > 1 MeV) vid en temperatur av ca 260°C. Även i detta fall bestämdes neutrodoserna genom monitorering. I båda fallen motsvarar neutrodosernas förhållande till bestrålningstiden ett snabbneutronflöde av ca $7.5 \cdot 10^{17}$ n/m² · s.

4.3 Provningsmetod

Provningen utfördes med konstant förlängningshastighet i en Instron-dragprovmaskin av skruvtyp inbyggd i en blycell. Under försöken var proverna inneslutna i en ugn med en temperatur av 300°C. Vid spänningskorrosionsförsöken cirkulerades argon med jodtillsats genom ugnen. Jodtillsatsen utfördes genom att argongasen fick passera genom en flaska med jodkristaller vid rumstemperatur. Därigenom fås ett litet partialtryck av jod i gasen som vid jämvikt motsvarar 0.3 torr. Det verkliga jodtrycket är dock förmodligen lägre på grund av olika reaktionshämningar vid jodförgasningen. Genom vägning av jodkristallerna kunde det emellertid konstateras att jod förbrukades under provningen och ett typiskt värde vid en provtid av några timmar var 60 mg. Provning utan jod utfördes i långsamt genomströmmande Ar.

Den lägsta draghastigheten för Instronmaskinen i standardutförande är 0.02 mm/min. Detta är den hastighet med vilken

det obestrålade materialet provades (13). Denna hastighet är i högsta laget för att man över huvud taget ska få spänningskorrosionsbrott vilket också bekräftades i den provserie som kördes med denna hastighet. För att uppnå lägre draghastigheter konstruerades en speciell tillsats till maskinen, (en tillsats som för övrigt enkelt kan monteras i vilken dragprovmaskin som helst) vilken i princip medger provning med hur låga draghastigheter som helst. Tillsatsen består av en 200 mm lång rostfri stav försedd med en ugnslindning så att staven kan värmas upp till ca 300°C. På staven finns ett termoelement som kan användas för att styra effekten till staven så att önskad temperatur kan erhållas. Om temperaturen regleras med en programmerbar ugnregulator kan längden på staven varieras efter önskemål inom ramen för en möjlig längdförändring av maximalt 0.4 mm. Vid den spänningskorrosionsprovning som gjordes i denna undersökning värmdes staven först till 300°C varefter dess temperatur fick sjunka med en konstant hastighet anpassad för att ge önskad draghastighet. Innan provningen lades en viss förspänning på provet med dragprovmaskinens normala drivsystem.

Förlängningshastigheten kan inte direkt översättas till en töjningshastighet hos provet inom det elastiska området eftersom betydande delar av förlängningen tas upp som elastisk deformation dels hos de delar av provstaven som inte utgör provsektion och dels hos dragstänger och dragprovmaskin. I nedanstående tabell redovisas sambandet mellan draghastighet och deformationshastighet för använda draghastigheter och i en kolumn även den mot deformationshastigheten svarande ramphastigheten vid en effekthöjning i en typisk BWR-bränslestav.

Tabell 1

Draghastighet mm/min	Spännings- ökningshastighet MPa/min	Elastisk töjningshastighet min ⁻¹	Motsvarande* ramphastighet kW/m/min
0.02	40	$5 \cdot 10^{-4}$	2.5
0.009	18	$2.3 \cdot 10^{-4}$	1.1
0.002	4	$5 \cdot 10^{-5}$	0.25
0.00077	1.5	$1.9 \cdot 10^{-5}$	0.09

Som jämförelse kan nämnas att ramphastigheten i INTERRAMP-projektet varit ca 5 kW/m/min.

5 RESULTAT

5.1 Provningsresultat

Resultaten från prover med olika texturer och värmebehandlingar har sammanfattats i tabell A.1. Det mest slående resultatet är att provstavarna i många fall - för låga draghastigheter till och med i flesta fall - har gått till brott före sträckgränsen. Att brottspänningarna är lägre än sträckgränsen är inte bara en följd av att denna höjts med bestrålningen. Brottspänningarna är också väsentligt lägre än de brottspänningar som observerades i den tidigare undersökningen på obestrålat material (13).

I Fig A.2 visas sträckgränsernas beroende av texturen efter bestrålning. Värdena har relativt stor spridning men tendenserna är desamma som före bestrålning, dvs 30⁰-texturen har något lägre sträckgräns än de övriga. Sträckgränshöjningen på grund av bestrålning är ca 250 MPa för de säkert rekristalliserade materialen, det vill säga 0, 15 och 30⁰, värmebehandlade vid 575⁰C. Värdet stämmer väl med tidigare erhållen korrelation för plantöjningsprovning av rör vilken ger en sträckgränshöjning av mellan 230 och 250 MPa efter bestrålning till en dos av $2.5 \cdot 10^{24}$ n/m² (5). För material värmebehandlat vid 510⁰C är sträckgränshöjningen något mindre

*Under antagande att radiell förskjutning hos kutsen är ca 1 μ/kW/m.

men dessa material har fortfarande högre sträckgräns än materialen värmebehandlade vid 575°C.

För proverna med de högsta draghastigheterna kan man liksom för det obestrålade materialet se inverkan av jod på totalförlängningen till brott. Brottförlängningarna för prover provade vid 0.02 och 0.009 mm/min draghastighet finns redovisade i Fig A.3 och A.4. För de prover som överlevt någon plastisk töjning är inverkan av jod måttlig men signifikant. I många fall är det dock helt klart att joden inte haft någon inverkan på brottförlängningen. I flera fall har prover även vid de högsta draghastigheterna gått av med enbart elastiska töjningar. Det är speciellt intressant att notera att 45° och 65°-texturerna tycks vara något känsligare än de andra medan de i obestrålat tillstånd var så gott som opåverkade av jodmiljön (13).

Vid de två låga draghastigheterna kan spänningsskorrosionskänsligheten bäst karakteriseras med en brottspänning. I figurerna A.5 och A.6 har brottspänningen plottats som funktion av texturen. Det är svårt att ur figurerna dra någon slutsats om material med någon viss textur är mindre känsligt än något annat material. I Fig A.5 över provning med 0.002 mm/min finns en tendens till att 0°-texturen är mindre känslig än övriga men med tanke på spridningen i samtliga resultat förefaller en sådan slutsats vara mycket spekulativ. Även vid 0.00077 mm/min finns en tendens till att 0°-texturen är mindre känslig än övriga. I själva verket var tendensen mycket klar innan det sista provet med 0°-textur gjordes vilket gav värdet 200 MPa för brottspänningen. Den rimligaste slutsatsen mot bakgrunden av presenterade resultat tycks vara att texturen inte har någon signifikant inverkan på spänningsskorrosionskänsligheten efter bestrålning. Inte heller verkar det spela någon större roll vilken värmebehandling som gjorts innan bestrålningen. Den från början uppställda hypotesen att avspänningsglödgat material skulle vara mer resistent mot spänningsskorrosion än rekristalliserat material efter bestrålning kan definitivt förkastas.

Det avspänningsglödgade materialet är i själva verket något sämre.

Resultatet från provning av de speciella materialen Zr, Zr-1 Nb och beta-släckt Zircaloy presenteras i tabell A2. Bröttöjningarna för obestrålat Zr och Zr-1 Nb är oväntat små med tanke på att materialen nominellt bör vara mycket mjuka. Möjligen ger värdena underlag för en misstanke att materialen förorenats under provprepareringen. Metallografisk undersökning av proverna visade att Zr-proverna innehöll 50 μ stora porer. Däremot fanns inga anmärkningsvärda inneslutningar i Zr-1 Nb-proverna.

I obestrålat tillstånd fanns ingen inverkan av jod på bröttöjningen hos Zr medan däremot för Zr-1 Nb och beta-släckt Zircaloy bröttöjningen minskade signifikant. Minskningen var ca 60 % för Zr-1 Nb och ca 30 % för betasläckt Zircaloy. Detta antyder att Zr-1 Nb redan i obestrålat tillstånd är känsligare än Zircaloy för spänningskorrosion.

Efter bestrålning var samtliga material mycket spänningskorrosionskänsliga och samtliga prover gick till brott med endast elastiska töjningar. En egendomlig omständighet var att båda Zr-proverna och ett av Zr-1 Nb-proverna gick till brott utan plastisk töjning även i argon. Detta kan tolkas antingen som att ugnen har varit något jodkontaminerad och att dessa material är extremt spänningskorrosionskänsliga efter bestrålning eller också som att de föroreningar som materialen tagit upp under tillverkningen i kombination med bestrålningen kraftigt försprödat materialen. Mot bakgrund av det metallografiska underlag som finns framstår den förra tolkningen som mest sannolik för Zr-1 Nb medan Zr-provernas brottkänslighet kan vara orsakad av porerna.

Liksom för Zircaloy-proverna med olika texturer minskar brottspänningarna med avtagande töjningshastighet. De extremt låga brottspänningarna för Zr-1 Nb vid den lägsta

töjningshastigheten ger ytterligare belägg för att detta material är extremt känsligt för jodspänningskorrosion.

5.2 Undersökning av brottytor med svepelektronmikroskop

I avsikt att belysa orsaken till att bestrålade prover spricker långt under sträckgränsen gjordes en relativt noggrann undersökning i svepelektronmikroskop av de flesta av de rekristallisationsglödgade prover som provats vid den lägsta draghastigheten. Gemensamt för alla proverna var att de på ytan hade en beläggning av små partiklar 0,5 - 2 μ i diameter förmodligen någon slags crud från R2-systemet. En intressant iakttagelse var också att det på proverna med texturer från 30^o - 65^o hade bildats en form av oxidnoduler på ytan. Ett exempel på både noduler och ytbeläggning kan ses i Fig. A.7 och ett snitt genom en nodul ses i Fig. A.8. Allmänt sett fanns emellertid inget samband mellan noduler och ytsprickor. Gemensamt för proverna var också att brottytan var uppdelad i en spröd del och en duktil del, där den duktila delen representerar det duktila slutbrottet. Den slutsats man drar av detta blir att så fort en SCC-spricka initieras utbreder den sig ganska snabbt tills den för den rådande spänningen karakteristiska gränslasten nås då man får det duktila slutbrottet. Om inte utbredningen vore snabb borde man ha sett SCC-sprickor initierade på den duktila delen av provet och inte i något fall kunde detta observeras. Ett stöd för hypotesen är också att på den sida av provet där SCC-sprickan initierats fanns i allmänhet inte några andra ytsprickor medan däremot den duktila sidan av provet uppvisade ett flertal ytsprickor som uppstått i samband med det duktila slutbrottet. Något bevis för interkristallin initiering av spänningskorrosionsbrottet kunde inte upptäckas utan alla observerade sprickor var transkristallina. Ett typiskt exempel visas i Fig. A.9 a och b från ett prov med 0^o-textur. Här kan man också notera att den stora transkristallina fasetten måste ha gått genom flera

korn, jämför dess storlek med kornstorleken ca 8μ . I Fig. A.10 från samma prov finns ett exempel på en klyvyta med tillhörande "fluted facets". Av stereobilderna i Fig. A.11 framgår också att klyvytorna är praktiskt taget parallella med dragriktningen, dvs klyvplanen är nära parallella med basplanen och klyvning sker längs dessa trots att de nominellt inte är belastade med någon normalspänning. I övriga prover var klyvytorna successivt alltmer orienterade vinkelrätt mot spänningen i analogi med hur basplanen blir alltmer vinkelräta mot spänningen med ökad texturvinkel.

Ett prov som avvek från de övriga var ett 30° -prov som enligt dragprovkurvan gått till brott utan nämnvärd plastisk deformation vid en spänning väsentligt under sträckgränsen. Ingenstans på brottytan fanns något område med ett utseende karakteristiskt för spänningskorrosionsbrott. Emellertid var den duktila brottytan relativt slät och dimplerna anmärkningsvärt grunda som framgår av Fig. A.12.

Undersökningen av det Zr-1 Nb-prov som provats i argon men brustit sprött visade att brottytan var så gott som helt av SCC-karaktär. Detta tyder på att rester av jod i provugnen varit tillräckliga för att orsaka SCC-brott i denna legering som därför måste betecknas som ytterst spänningskorrosionskänslig. Ytan på Zr-1 Nb var också relativt ojämn på grund av korrosion under bestrålningen, vilket säkert bidragit till att en spänningskorrosionspricka lätt initierats. Brottytan på provet av "ren" Zr som spruckit sprött utan jod visade sig innehålla en mängd av vad som verkar vara spröda partiklar av vilka några exempel visas i Fig. A.13. För bildningen i Fig. A.14 är det svårt att avgöra om det är en partikel eller en por. Möjligen är det en kombination av båda. Porerna och eventuellt partiklarna har med all säkerhet starkt bidragit till den låga duktiliteten hos dessa prover efter bestrålningen. Emellertid kan inte heller brottytan i övrigt karakteriseras som entydigt duktil varför man måste göra en reservation för att även ren Zr kan vara korrosionskänslig vid mycket små jodmängder.

En avsikt med SEM-undersökningen var att se om "dislocation channelling" med tillhörande grova glidband spelar någon roll vid initieringen av spänningskorrosionsprickor i bestrålat material. Inget belägg för detta kunde hittas vilket delvis kan ha orsakats av att sådana effekter kan ha dolts av alla korrosionsprodukter på ytan. Men man bör också hålla i minnet att många av proverna brustit vid laster lägre än halva sträckgränsen. Enligt vår tidigare högdosbestrålningundersökning (21) har 0,0% plastisk töjning skett tidigast vid ca 75% av sträckgränsen. Det förefaller osannolikt att särskilt mycket channelling kan ha skett dessförinnan. Därför bör vi förkasta den initieringshypotesen och i stället rikta uppmärksamheten mot oxidens duktilitet, speciellt i kombination med sekundärfaser.

6 DISKUSSION

6.1 Inverkan av textur och värmebehandling

Resultaten visar, att inverkan av texturen på spänningskorrosionskänsligheten, om den över huvud taget finns, är högst obetydlig. Det torde i alla händelser vara klart att det på nuvarande dataunderlag inte finns motiv för att satsa på exempelvis rör med O^0 -textur om dessa blir ens obetydligt dyrare än normala rör i tillverkning.

Det står också klart att det trots goda argument för motsatsen (25) och vissa uppmuntrande experimentella erfarenheter (11) inte finns något motiv för att använda avspänningsglödgad kapsling i stället för rekristallisationsglödgad. Det rekristallisationsglödgade materialet är något mindre spänningskorrosionskänsligt än det avspänningsglödgade också efter bestrålning under belastningsförhållanden liknande dem som föreligger under en effekthöjning i bränslet.

Materialvarianterna betasläckt Zircaloy och Zr-1 Nb är sämre än det normala Zircaloy-materialet, medan det på befintligt underlag inte går att dra några slutsatser beträffande "crystal bar"-zirkonium.

6.2 Brottkriterier för bestrålad Zircaloy

Det är svårt att ur så spridda data som erhållits i denna undersökning få fram några enkla kvantitativa brottkriterier. Resultatet av SEM-undersökningen indikerade klart att det avgörande steget i SCC-brottet är initieringen och det kunde också konstateras att spänningen då brottet initierats knappast kunde ha något att göra med begynnande plastisk deformation eftersom brottet i många fall skett långt innan mätbar plastisk deformation ägt rum. Man kanske därför som arbetshypotes kan anta att brottet initieras genom mekanisk nedbrytning av oxidskiktet. Exakt vad denna beror på är svårt att ange men det finns skäl att anta att den beror på en mängd statistiskt fördelade faktorer som lokal oxidtjocklek, underliggande korns kristallorientering, orienteringsrelationer mellan angränsande kristallkorn, sekundärfaser i och strax under oxidytan, etc. Det är mot den bakgrunden inte orimligt att resultaten visar så stor spridning som de gör och det kan också vara värt besväret att försöka ge resultaten en statistisk behandling och ta fram en fördelningsfunktion för brottspänningarna vid olika töjningshastigheter. Den statistiska behandlingen kan omfatta endast de prover som gått till brott innan sträckgränsen eftersom efter sträckgränsen oxidskiktet lätt bryts upp genom den plastiska deformationen. Därigenom begränsas utvärderingen till provningar utförda med draghastigheterna 0,002 och 0,00077 mm/min. Vid den senare draghastigheten gjordes endast fem prover av material värmebehandlat vid 510°C vilket är definitivt för litet för att en statistisk behandling ska vara meningsfull.

Vidare antas att texturen inte har någon inverkan på brotts sannolikheten, vilket enligt Fig. A.6 kan vara ett rimligt antagande för prover dragna med 0,00077 mm/min medan det för prover dragna med 0,002 mm/min från Fig. A.5 framgår att brottspänningarna för dubbelproverna vid varje textur och värmebehandling relativt väl ansluter till varandra.

För rekristallisationsglödgade prover vid 0,002 mm/min har några prover inte brutit förrän efter viss plastisk deformation. Om man emellertid ser närmare på dessa resultat framgår att för flera av dessa både $\sigma_{0,2}$ och σ_B ligger klart under motsvarande värden för icke spänningskorrosionsprovat material varför man kan anta att sprickutbredning bidragit till registrerad plastisk deformation. För dessa prover används $\sigma_{0,2}$ som brottspänning. Därmed återstår ett prov vid vardera 0,002 och 0,00077 mm/min som är klart plastiskt deformerade före brott. Dessa kan dock inräknas i det statistiska underlaget som prover vilka har en okänd hög brottspänning som ej kunde uppnås på grund av att $\sigma_{0,2}$ uppnåddes dessförinnan. Vid de högre töjningshastigheterna är andelen sådana prover ganska hög vilket i förening med det låga totala antalet prover gör det omöjligt att för dessa töjningshastigheter utvärdera brottssannolikheten som funktion av spänningen inom det elastiska området.

För att åskådliggöra fördelningen av brottspänningen kan man för varje grupp av data rita upp andelen prov som gått till brott vid en viss spänning som funktion av spänningen. Detta resulterar i en trappstegsformad kurva som om man jämnar ut den förvandlas till en S-formad kurva som man med lite fantasi kan identifiera som en normalfördelningskurva. För att utvärdera parametrarna i normalfördelningen kan man göra motsvarande uppritning på ett normalfördelningspapper. Det visar sig att alla tre datagrupperna ger relativt hyggliga räta linjer vid en sådan uppritning. Emellertid ger normalfördelningen en viss sannolikhet för brott även för spänningsfria prov liksom för prov med kompressiva spänningar vilket är fysikaliskt otillfredsställande.

Det finns emellertid en grupp fördelningsfunktioner som inom det variationsintervall som är av intresse här påminner om en normalfördelning och dessutom har den trevliga egenskapen att de har ett tröskelvärde under vilket sannolikheten är noll, nämligen Weibull-fördelningarna.

Dessa har formen

$$F(x) = 1 - \exp - \left(\frac{x}{\alpha}\right)^n \quad (1)$$

$$x \geq 0, \alpha \geq 0, n \geq 0$$

Omvandlat till en fördelningsfunktion för brottspänningarna σ_B med ett tröskelvärde σ_0 under vilket sannolikheten för spänningskorrosionsbrott är noll fås

$$F(\sigma_B) = 1 - \exp - \left(\frac{\sigma_B - \sigma_0}{\alpha}\right)^n \quad (2)$$

med en frekvensfunktion

$$f(\sigma_B) = \frac{n}{\alpha} \left(\frac{\sigma_B - \sigma_0}{\alpha}\right)^{n-1} \exp - \left(\frac{\sigma_B - \sigma_0}{\alpha}\right)^n \quad (3)$$

Parametern α är väsentligen en skalfaktor som bestämmer variansen hos fördelningen medan n bestämmer fördelningens karaktär. För $n = 1$ är frekvensen högst vid $\sigma_0 = \sigma_B$ medan $n \geq 2$ ger $f(\sigma_0) = 0$. För $n = 2$ stupar fördelningsfunktionen tvärt mot σ_B -axeln medan den för större n -värden smyger in mot σ_B -axeln vid $\sigma_B = \sigma_0$.

Fördelningarna av brottspänningen har uppritats för $n = 2, 3$ och högre värden på n på papper där y -axeln graderats i enlighet med respektive Weibull-funktion. Det visar sig då att för $n = 2$ och 3 fås hyggliga räta linjer medan högre värden på n ej ger särskilt god anpassning. I Fig. A.15 och A.16 visas resultatet för $n = 2$ respektive $n = 3$ för rekristallisationsglödgrade prover vid $0,00077$ mm/min. De räta linjerna har anpassats med minsta kvadratmetoden till punkterna i figuren. (Detta innebär inte någon minsta kvadratanpassning till respektive Weibull-funktion utan är bara ett praktiskt sätt att lägga in en rät linje som ansluter väl till punkterna.) Något kriterium för att bestämma vilket n som ger "bästa" anpassning har inte kunnat hittas. Möjligen är det fysikaliskt mer tillfredsställande med det högre tröskelvärdet som erhålles för $n = 2$. I övrigt ger naturligtvis både $n = 2$ och $n = 3$ i stort sett samma brottssannolikhet

för ett visst σ_B av det enkla skälet att kurvorna är anpassade till samma primärdata. Nedanstående värden på olika parametrar erhöles för de olika provgrupperna.

Tabell 2

Draghastighet/Värmebehandling	n	σ_0 MPa	Medelvärde av σ_B MPa	Standard- deviation MPa
0,002/575°C	2	308	419	58
"-	3	268	417	54
0,002/510°C	2	192	367	91
"-	3	116	366	91
0,00077/575°C	2	126	326	104
"-	3	40	325	103

Det sökta brottkriteriet för bestrålad Zircaloy skulle således vara uttryckt som en sannolikhet för att spänningskorrosionsbrott ägt rum som funktion av spänningen. Medelvärde och tröskelvärde borde då vara funktioner av töjningshastigheten. Tillgängligt dataunderlag är dock alldeles för litet för att man ska kunna ge några säkra värden på hur dessa parametrar varierar med töjningshastigheten. Tendensen är dock helt klar. Ju lägre töjningshastighet desto lägre värden på både tröskelvärde och medelvärde.

6.3 Tillämpning på bränslestavar

Observationen att både tröskelvärde och medelvärde på brottspänningen minskar med minskande töjningshastighet stämmer inte med erfarenheterna från reaktorbränsle där man genom att minska effekthöjningshastigheten kan undvika kapslingsbrott. Även om en minskning av effekthöjningshastigheten håller både spänningar och töjningar i kapslingen låga på grund av såväl kapslings- som UO₂-kryp är det emellertid mindre troligt att de kan bli tillräckligt låga för att man ska undvika spänningskorrosionsbrott vid konstant miljö.

Den viktiga slutsats man drar blir därför att den väsentliga inverkan av ramphastigheten (och kanske även ramphöjden när tröskelvärden observeras) är, att man genom att hålla en låg ramphastighet (eller låg rampnivå) inte skapar tillräckligt korrosiv miljö innanför kapslingen för att spänningskorrosionsbrott ska inträffa.

Det verkar inte rimligt att direkt använda den funna fördelningsfunktionen för brottspänningarna som ett brottkriterium för en bränslestav eftersom man i staven rimligtvis har flera platser där spänningskorrosionsbrott kan tänkas inträffa med den sannolikhet som ges av frekvensfunktionen för brottspänningarna. Exempelvis kan man tänka sig att det på ungefär en position per kuts finns möjlighet för brott att inträffa, vilket förslagsvis kanske kan gälla för de 20 högst belastade kutsarna längs staven. Sannolikheten för att brott på staven inte ska ha inträffat när man nått en viss spänning ges då av

$$\left[1 - F(\sigma)\right]^{20} = \exp - 20 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\alpha}\right)^n \quad (4)$$

dvs fördelningsfunktionen för brottspänningen för en bränslestav blir

$$F_s(\sigma) = 1 - \exp \left[- 20 \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{\alpha}\right)^n \right] \quad (5)$$

Enligt (5) kommer brott på staven med stor sannolikhet att inträffa mycket snart sedan tröskelvärdet σ_0 nåtts. De tröskelvärden som erhöles i denna undersökning var mycket låga vid den lägsta töjningshastigheten men ligger vid 0,002 mm/min på vad som verkar vara en rimlig nivå. Återigen finns skäl att dra slutsatsen att det vid låga töjningshastigheter, svarande mot låga effekthöjningshastigheter, är miljön i stavarna som blir mindre korrosiv.

6.4 Kan resultaten analyseras utifrån en initierings- sprickutbredningsmodell?

Ett på senare tid framgångsrikt sätt att analysera spänningskorrosionsdata för Zircaloy har varit att utgå från en ekvation för sprickutbredningshastigheten som funktion av spänningsintensitetsfaktorn för spänningskorrosionssprickan (18, 26, 27, 28):

$$\frac{da}{dt} = C K_I^n \quad (6)$$

a = sprickdjup

$K_I = \alpha \sigma \sqrt{a}$ spänningsintensitetsfaktor

α = konstant beroende på sprickans geometri

σ = spänning

C, n = konstanter

Brott inträffar då sprickan blivit så djup att den så kallade gränslasten uppnås. För bestrålad Zircaloy under plan töjning gäller med god noggrannhet att detta inträffar då (5)

$$\sigma = \frac{h - a}{h} \sigma_{0,2} \quad (7)$$

h = provets tjocklek

Under den provning som utförts gäller att den hastighet med vilken spänningen höjts varit konstant:

$$\frac{d\sigma}{dt} = \beta \quad (8)$$

Ekvation (6) och (8) kan lösas om man antar att det under inverkan av det korrosiva mediet (jod) bildas en spricka med djupet a_0 vid tidpunkten t_0 . Detta antagande är inte unikt för denna undersökning utan är nödvändigt för varje tillämpning av ekvation (6) på ett spänningskorrosionsfall om man inte från början haft en skarp spricka i provet. Det verkar plausibelt att associera begynnelse-sprickan a_0 med exempelvis den interkristallina brottyta som ofta observeras där spänningskorrosionsbrottet initierats. Å andra

sidan är det värt att komma ihåg att i denna undersökning observerades ingen interkristallin initiering och också att den interkristallina sprickutbredningen ibland följer ekvation (6). Här finns otvivelaktigt starka motiv för ytterligare forskningsinsatser för att klarlägga initieringen av spänningskorrosionssprickor. Lösningen av ekvation (6) innehåller ett σ -värde då ekvation (7) är uppfylld. Detta ger en ekvation för brottspänningen σ_B :

$$\frac{C \alpha^n}{(n+1) \beta} \sigma_B^{n+1} + \frac{1}{\left(\frac{n}{2} - 1\right) h^{\frac{n}{2} - 1} \left(1 - \frac{\sigma_B}{\sigma_{0,2}}\right)^{\frac{n}{2} - 1}} - \left[\frac{C \alpha^n \beta^n t_0^n}{n + 1} + \frac{1}{\left(\frac{n}{2} - 1\right) a_0^{\frac{n}{2} - 1}} \right] = 0 \quad (9)$$

Ekvation (9) kan göras till föremål för många intressanta analyser. Här ska den användas dels för att se om befintliga sprickutbredningsdata för obestrålad Zircaloy ger rimliga värden på brottspänningen och dels för att se om den någorlunda korrekt förutsäger brottspänningens töjningshastighetsberoende.

Ur referens 18 erhålles sprickutbredningshastigheten vid 300°C i jod som

$$\frac{da}{dt} = 1,5 \cdot 10^{-16} K_I^8 \quad \text{m/s} \quad [K_I] = \text{MPa} \sqrt{\text{m}}$$

Även det i referens 18 använda $\alpha = 2,5$ torde kunna användas här. Med $\sigma_{0,2} = 500$ MPa, $a_0 = 20 \mu$ och $t_0 = 600$ s erhålles för 0,002 och 0,00077 mm/min (motsvarande värden på β finns i tabell 1) brottspänningarna 469,9 respektive 469,7 MPa, vilket väsentligen är lika med gränslasten för provet med den antagna initialdefekten. Genom att öka a_0 erhålles ett lägre värde på σ_B men i stort sett endast därför att gränslasten minskar med a_0 . Med $a_0 = 60 \mu$ ($\sim 20\%$ av provtjockleken) fås σ_B -värdena 408 respektive 404 MPa. Man ser lätt att t_0 -värdet vid här använda töjningshastigheter och defektstorlekar inte har någon som helst inverkan på resultatet. Om man emellertid antar att sprickutbredningen för

bestrålat material är 1000 gånger snabbare för bestrålat material än för obestrålat material men har samma spänningsberoende, dvs $C = 1,5 \cdot 10^{-13}$ fås med $a_0 = 20 \mu$ brottspänningarna 363 respektive 325 MPa. Detta stämmer utomordentligt väl med medelbrottspänningen vid den lägre töjningshastigheten medan beräknad brottspänning vid den högre töjningshastigheten är lägre än den uppmätta medelbrottspänningen för material värmebehandlat vid 575°C. Emellertid är det helt klart att en initierings- sprickutbredningsmodell ger rätt riktning på töjningshastighetsberoendet för försöken och också en klar indikation vid användning av sprickutbredningsdata från obestrålad Zircaloy att sprickutbredningen i bestrålad Zircaloy är väsentligt snabbare än i obestrålad Zircaloy.

Med tanke på resultatens stora spridning ligger det nära till hands att förklara denna med att initialsprickans storlek är statistiskt fördelad. Två beräkningar har utförts med a_0 normalfördelad med medelvärdet 20 μ och standardavvikelserna 10 μ respektive 15 μ . I båda fallen genererades 14 a_0 -värden för vilka tillhörande σ_B -värden beräknades (eller snarare avlästes ur ett beräknat a_0 - σ_B -diagram). Resulterande fördelningar av σ_B -värden jämfördes sedan med resultaten vid 0,00077 mm/min. De uppkomna fördelningarna var snävare än den experimentella fördelningen och om man genom att öka standardavvikelsen vill bredda den beräknade σ_B -fördelningen kommer en väsentligt större andel av proven att passera $\sigma_{0,2}$ -gränsen än vad som observerades experimentellt. Det är därför osannolikt att spridningen kan förklaras med att a_0 är normalfördelad. Däremot kan det inte uteslutas att en noggrann experimentell studie av sprickinitieringen skulle kunna ge belägg för att a_0 är fördelad på något annat sätt som ger rätt fördelning för brottspänningen.

- 7 SLUTSATSER
- 1 Bestrålad Zircaloy är spänningskorrosionskänslig vid spänningar väsentligt under sträckgränsen.
 - 2 Inom intervallet 0 - 65° finns ingen textur som ger några väsentliga fördelar jämfört med någon annan textur med avseende på spänningskorrosionskänsligheten.
 - 3 Avspänningsglödgad Zircaloy är något mer spänningskorrosionskänslig än rekristallisationsglödgad Zircaloy efter bestrålning.
 - 4 Betasläckt Zircaloy och Zr-1 Nb är väsentligt spänningskorrosionskänsligare än normal Zircaloy efter bestrålning.
 - 5 Det finns inget enkelt brottkriterium för bestrålad Zircaloy. För låga töjningshastigheter där materialet spricker vid spänningar under sträckgränsen kan man emellertid för varje töjningshastighet och värmebehandlingstillstånd hitta en fördelningsfunktion för brottspänningen ur vilken brottssannolikheten vid en viss spänning kan uppskattas.
 - 6 Allt tyder på att brottspänningarna genomsnittligt blir lägre med lägre töjningshastighet vid konstant jodmiljö. Fördelen med låga ramphastigheter bör därför vara en miljöeffekt snarare än en spänningseffekt.
 - 7 Resultaten kan analyseras med hjälp av sprickutbredningsdata för obestrålad Zircaloy om man antar att sprickutbredningshastigheten är 1000 gånger högre i bestrålad Zircaloy än i obestrålad Zircaloy.

REFERENSER

1. B COX
Environmentally induced cracking of zirconium alloys.
Reviews on Coatings and Corrosion 1 (1975):
4, p 367.
2. B C SYRETT, D CUEICCIOTTI och R L JONES
Embrittlement of Zircaloy-4 by liquid cesium at 300°C.
ASTM-STP-633, p 281.
3. W T GRUBB
Cadmium metal embrittlement of Zircaloy-2.
Nature 265 (1977) p 36.
4. K VIDEM
What does the fracture surface of cladding defects tell.
Enlarged Halden Programme group meeting on Water reactor fuel performance, Sanderstølen, Norge 1977-03-06--11.
5. K PETTERSON, G VESTERLUND och T ANDERSSON
The effect of irradiation on the strength, ductility and defect sensitivity of fully recrystallized Zircaloy tube.
Studsvik -78/5. Studsvik Energiteknik AB, 1978.
6. H S ROSENBAUM
The interaction of iodine with Zircaloy-2.
Electrochemical Technology 4 (1966) p 153.
7. G ÖSTBERG och R ATTERMO
Spänningskorrosionsbrott i Zircaloy-2 framkallat av jod.
AE-RMM-1723, AB Atomenergi 1969-02-20.
8. A GARLICK och P D WOLFENDEN
Fracture of zirconium alloys in iodine vapour.
J. Nuclear Materials 41 (1971), p 274.
9. J C WOOD
Factors affecting stress corrosion cracking in iodine vapour.
J. Nuclear Materials 45 (1972/73), p 105.
10. Mechanical behaviour of materials.
Red. av F. A. McClintock, A. S. Argon,
Addison-Wesley Publishing Co., Reading 1966,
p 349.

11. K VIDEM och L LUNDE
Fuel element failures caused by iodine stress corrosion.
Annals of Nuclear Energy 3 (1976), p 305.
12. A GARLICK
Fracture of Zircaloy cladding under simulated power ramp conditions.
J. Nuclear Materials 49 (1973/74), p 209.
13. K PETERSSON och W STANY
Effect of texture and heat treatment on the stress corrosion cracking sensitivity of Zircaloy-4.
Studsvik -78/3, AB Atomenergi 1978.
14. J C WOOD ET AL
Environmentally induced fracture of Zircaloy by iodine and cesium: the effects of strain rate, localized stresses and temperature.
J. Nuclear Materials 57 (1975), p 155.
15. K PETERSSON
Observationer av brottytor och sprickutbredningsriktningar vid jodinducerat spänningskorrosionsbrott i grovkornig Zircaloy-2.
AE-MF-538, AB Atomenergi 1975.
16. C E COLEMAN
Simulation of interaction between cracked UO₂-fuel and Zircaloy cladding.
Proc. Int. conference on Physical metallurgy of nuclear fuel elements, Berkeley, England, 2 - 7 september, 1973.
17. K VIDEM
Stress corrosion life time as a function of strain rate for Zircaloy cladding tubes in iodine vapour.
Conference on "The strain rate method of stress corrosion testing", Newcastle, England, April 1977.
18. K PETERSSON
Stress corrosion crack growth in unirradiated Zircaloy.
Studsvik/K4-78/12, Studsvik Energiteknik AB, 1978.
19. J C WOOD
Interactions between stressed zirconium alloys and iodine at 300°C.
Nuclear Technology 23 (1974), p 63.

20. A GARLICK
Stress corrosion cracking of zirconium alloys
in iodine vapour.
Proc. Conference on "Effect of Environment on
Material Properties in Nuclear Systems", p 21.
British Nuclear Energy Society, London 1971.
21. K PETERSSON och E HELLSTRAND
Mechanical properties of Zircaloy-2 after a
high-dose irradiation.
STUDSVIK/MZ-78/110, AB Atomenergi 1978.
22. D CUBICCIOTTI och R L JONES
EPRI-NASA Cooperative Project on Stress
Corrosion Cracking of Zircalloys.
NP-717, EPRI 1978.
23. D LEE och R B ADAMSON
Modelling of localized deformation in neutron
irradiated Zircaloy-2.
ASTM-STP 633, p 385.
24. R B ADAMSON
Discussion
4th International Conference on Zirconium in
the Nuclear Industry.
Stratford-upon-Avon, England 1978.
25. K PETERSSON
Metallografiska aspekter på jodinducerat
spänningskorrosionsbrott i Zircaloy.
TPM-MF-486, AB Atomenergi 1974.
26. K VIDEM och L LUNDE
Stress corrosion crack initiation and
growth in Zircaloy.
Enlarged Halden Programme Group Meeting,
Sanderstølen, Norway, 1977.
27. B COX och J C WOOD
The mechanism of SCC of Zirconium alloys
in halogens.
Proc. Int Conf on Mechanisms of Environment
sensitive cracking of Materials, Guildford,
UK 1977.
Eds. P R Swann et al, The Metals Society,
London 1977, p 520 - 530.
28. P H KREYNS, G L SPAHR och J E McCAULEY
An analysis of iodine stress corrosion
cracking of Zircaloy-4 tubing.
J. Nuclear Materials 61 (1976), p 203 - 212.

Tabell A.1

Textur/Värmebehandling	Draghastighet mm/min	Miljö	$\sigma_{0,2}$ MPa	σ_B MPa	Plastisk töjning vid brott, %	Likformig töjning %
0°/575°C	0,02	Ar	564	588	6,4	1,2
"	"	"	553	632	7,4	3,5
"	"	jod	-	447	-	-
"	"	"	500	535	1,8	1,5
0°/510°C	"	Ar	603	682	2,6	2,6
"	"	"	647	767	4,0	3,6
"	"	jod	-	520	-	-
"	"	"	559	620	1,4	1,4
15°/575°C	"	Ar	446	514	4,8	4,0
"	"	"	491	538	4,7	2,5
"	"	jod	544	559	5,2	1,0
"	"	"	500	535	7,0	2,5
15°/510°C	"	Ar	544	609	5,7	1,8
"	"	"	612	641	3,4	1,5
"	"	jod	573	700	3,9	3,5
"	"	"	609	652	1,6	1,6
30°/575°C	"	Ar	441	515	13	2,6
"	"	"	495	529	13,4	1,2
"	"	jod	-	388	-	-
"	"	"	500	514	5,2	0,7
30°/510°C	"	Ar	(456)	647	8,0	3,0

Textur/Värmebehandling	Draghastighet mm/min	Miljö	$\sigma_{0,2}$ MPa	σ_B MPa	Plastisk töjning vid brott, %	Likformig töjning %
30°/510°C	0,02	Ar	539	636	3,1	2,0
"	"	jod	603	647	5,2	1,8
"	"	"	544	635	5,2	2,1
45°/575°C	"	Ar	505	517	6,0	1,0
"	"	"	491	506	5,1	0,7
"	"	jod	523**)	529	1,6	0,4
"	"	"	-	270	-	-
45°/510°C	"	Ar	638	679	2,7	1,8
"	"	"	588	647	2,3	1,8
"	"	jod	-	535	-	-
"	"	"	529	612	2,7	2,4
65°/575°C	"	Ar	500	505	5,0	1,7
"	"	"	529	544	5,7	1,3
"	"	jod	-	426	-	-
"	"	"	514	529	5,9	1,2
65°/510°C	"	Ar	-	635	6	5
"	"	"	456	639	4,3	4,0
"	"	jod	-	500	-	-
"	"	"	-	535	-	-
0°/575°C	0,009	"	529	544	3,8	1,2
0°/510°C	"	"	606	735	4,7	3,0

***) Troligen brott initierat före $\sigma_{0,2}$

Textur/Värmebehandling	Draghastighet mm/min	Miljö	$\sigma_{0,2}$ MPa	σ_B MPa	Plastisk töjning vid brott, %	Likformig töjning %
15°/575°C	0,009	jod	500	509	2,2	1,0
15°/510°C	"	"	-	544	-	-
30°/575°C	"	"	482	509	3,6	0,9
0°/510°C	"	"	544	573	2,3	1,3
45°/575°C	"	"	476	514	5,4	1,8
45°/510°C	"	"	-	441	-	-
65°/575°C	"	"	-	529	-	-
65°/510°C	"	"	594	638	1,6	1,6
0°/575°C	0,002	"	500	544	7,4	3,0
"	"	"	-	403	-	-
0°/510°C	"	"	-	461	-	-
"	"	"	-	368	-	-
15°/575°C	"	"	473	503	3,4	1,5
"	"	"	-	391	-	-
15°/510°C	"	"	-	247	-	-
"	"	"	-	323	-	-
30°/575°C	"	"	-	353	-	-
"	"	"	432	441	2,0	0,8
30°/510°C	"	"	-	503	-	-
"	"	"	-	476	-	-
45°/575°C	"	"	-	332	-	-

Textur/Värmebehandling	Draghastighet mm/min	Miljö	$\sigma_{0,2}$ MPa	σ_B MPa	Plastisk töjning vid brott, %	Likformig töjning %
45°/575°C	0,002	jod	-	447	-	-
45°/510°C	"	"	-	309	-	-
"	"	"	-	373	-	-
65°/575°C	"	"	-	388	-	-
"	"	"	441	488	4,2	2,3
65°/510°C	"	"	-	264	-	-
"	"	"	-	329	-	-
0°/575°C	0,00077	"	-	364	-	-
"	"	"	-	435	-	-
"	"	"	-	200	-	-
0°/510°C	"	"	-	294	-	-
15°/575°C	"	"	-	197	-	-
"	"	"	-	312	-	-
"	"	"	-	335	-	-
15°/510°C	"	"	-	303	-	-
30°/575°C	"	"	-	226	-	-
"	"	"	494	500	6,3	0,4
"	"	"	-	315	-	-
30°/510°C	"	"	-	260	-	-
45°/575°C	"	"	-	270	-	-
"	"	"	-	467	-	-

Textur/Värmebehandling

Draghastighet
mm/min

Miljö

$\sigma_{0,2}$
MPa

σ_B
MPa

Plastisk
töjning vid
brott, %

Likformig
töjning
%

45°/510°C

0,00077

jod

-

235

-

-

65°/575°C

"

"

-

185

-

-

"_

"

"

-

417

-

-

"_

"

"

-

335

-

-

65°/510°C

"

"

-

297

-

-

Tabell A.2

Prov	Bestr	Draghastighet mm/min	Miljö	$\sigma_{0,2}$ MPa	σ_B MPa	Plastisk töjning vid brott, %	Likformig töjning
Zr	Nej	0,02	Ar	141	215	8,2	2,8
"	"	"	"	170	223	8	3,0
Zr-1 Nb	"	"	"	312	388	13	7,5
"	"	"	"	332	412	9	4,5
betasläckt	"	"	"	353	412	10	5,2
"	"	"	"	312	397	14	8,4
Zr	"	0,002	jod	170	188	6	2,0
"	"	"	"	165	182	7	1,4
"	Ja	"	Ar	-	194	-	-
"	"	"	"	-	235	-	-
"	"	"	jod	-	294	-	-
"	"	"	"	-	259	-	-
Zr-1 Nb	Nej	"	"	329	394	5,9	3,0
"	"	"	"	288	314	2,3	0,7
"	Ja	"	Ar	-	323	-	-
"	"	"	"	388	423	1,0	0,41
"	"	"	jod	-	262	-	-
"	"	"	"	-	141	-	-
betasläckt	Nej	"	"	332	408	8,5	3,5
"	"	"	"	335	391	7	2,2
"	Ja	"	Ar	479	523	8	2,4

Prov	Bestr	Draghastighet mm/min	Miljö	$\sigma_{0,2}$ MPa	σ_B MPa	Plastisk töjning vid brott, %	Likformig töjning
betasläckt	Ja	0,002	Ar	435	470	5	1,3
"	"	"	jod	-	394	-	-
"	"	"	"	-	350	-	-
Zr	Ja	0,00077	"	-	206	-	-
"	"	"	"	-	238	-	-
Zr-1 Nb	"	"	"	-	159	-	-
"	"	"	"	-	112	-	-
betasläckt	"	"	"	-	294	-	-
"	"	"	"	-	194	-	-

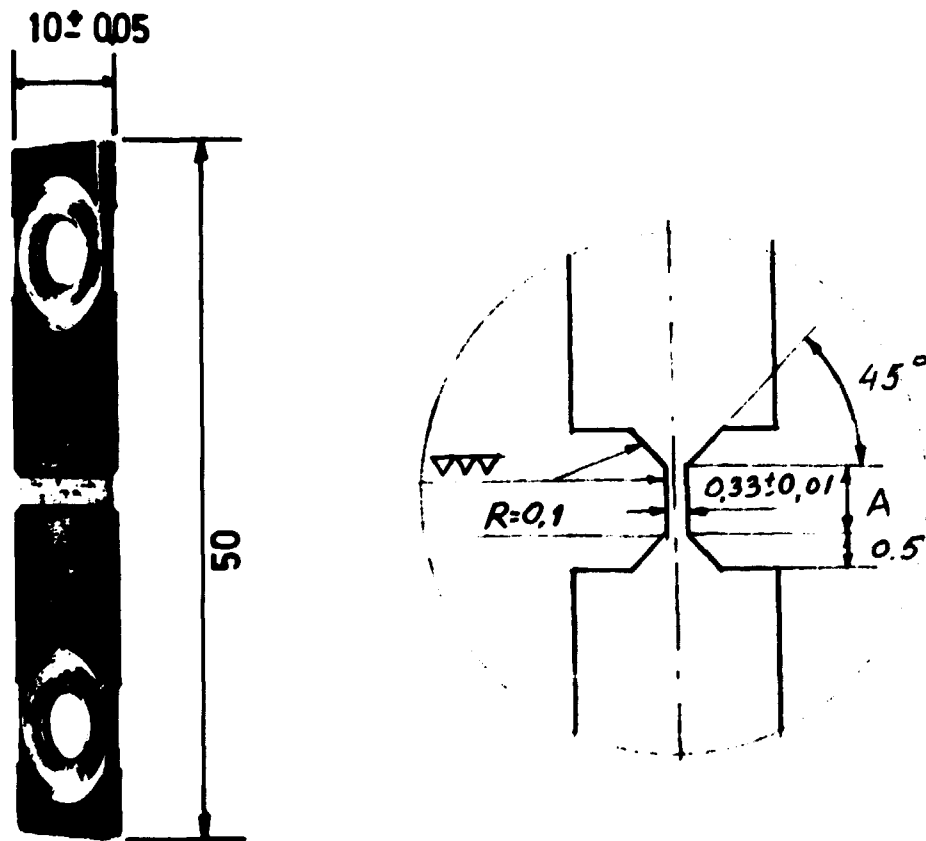


Fig. A1 Plantöjningsprovstavens konstruktion

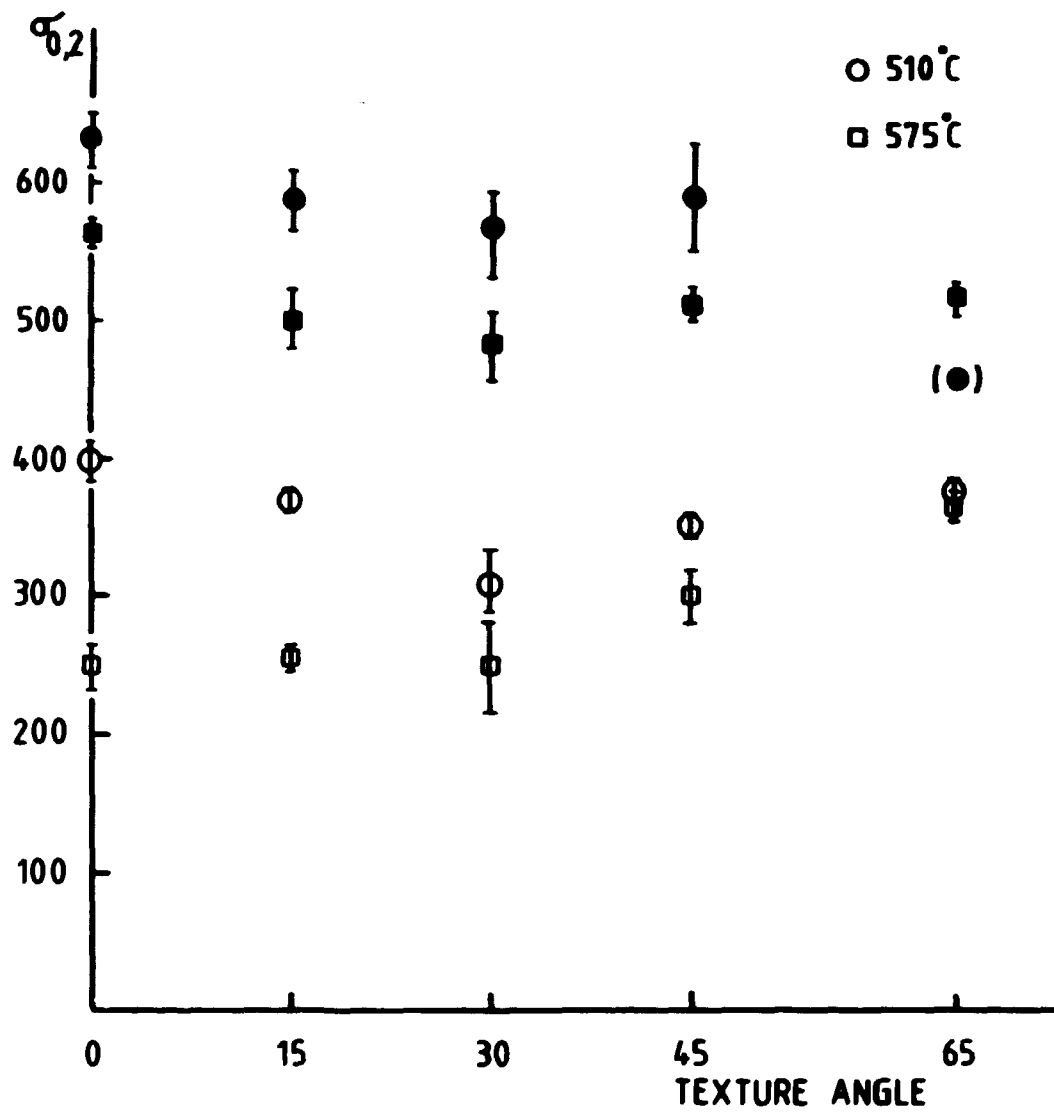


Fig. A2 Sträckgränsens beroende av texturen. Fyllida punkter representerar bestrålat material.

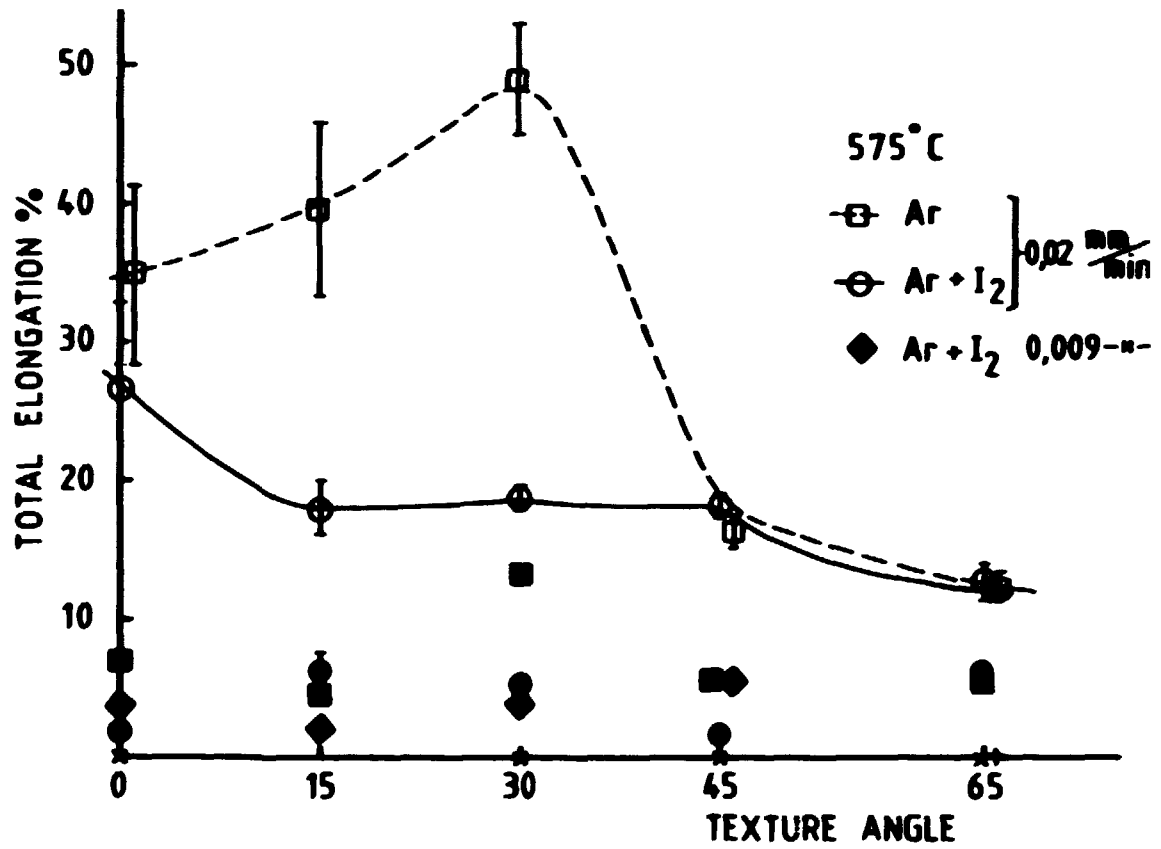


Fig. A3 Total förlängning som funktion av texturen för material värmebehandlat vid 575°C. Fyllda punkter representerar bestrålat material. x och + på texturen är prov utan mätbar plastisk deformation före brott.

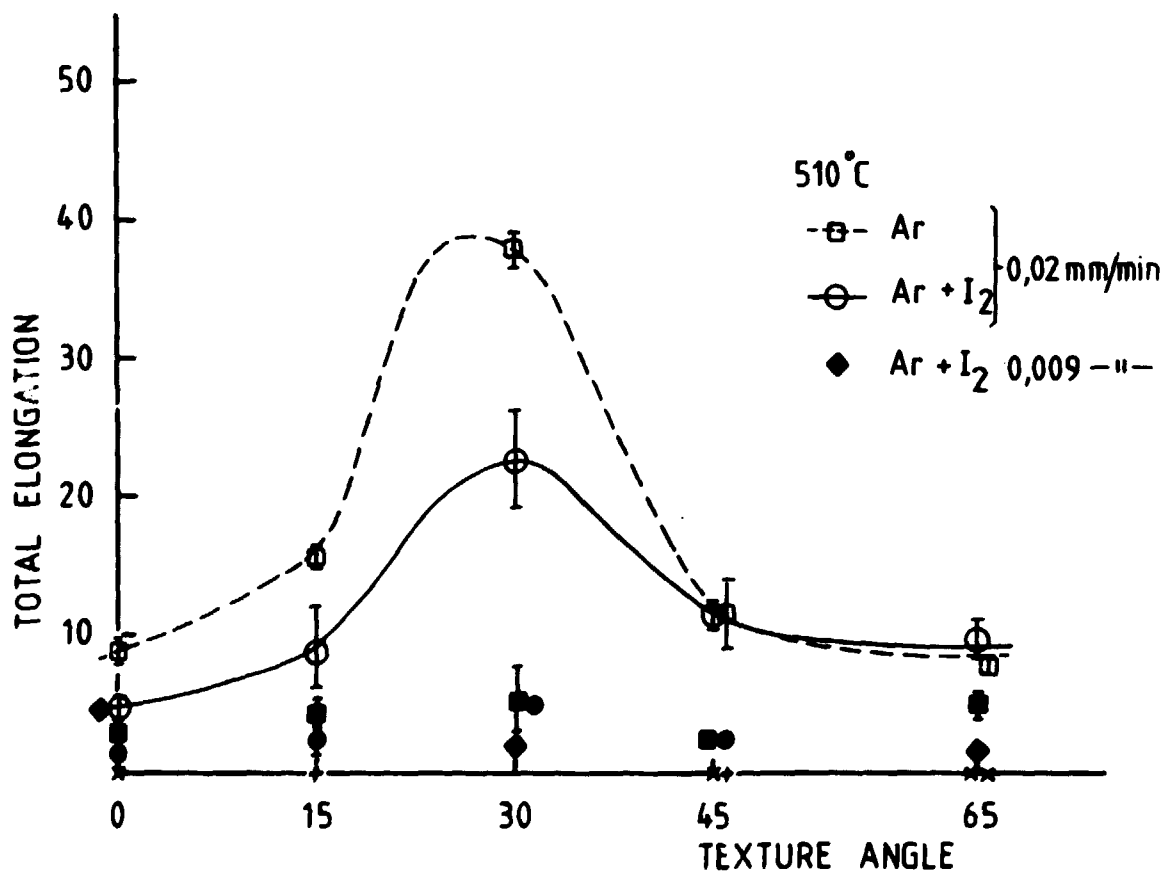


Fig. A4 Total förlängning som funktion av texturen för material värmebehandlat vid 510°C. Fyllda punkter representerar bestrålat material. x och + på texturaxeln är prov utan mätbar plastisk deformation före brott.

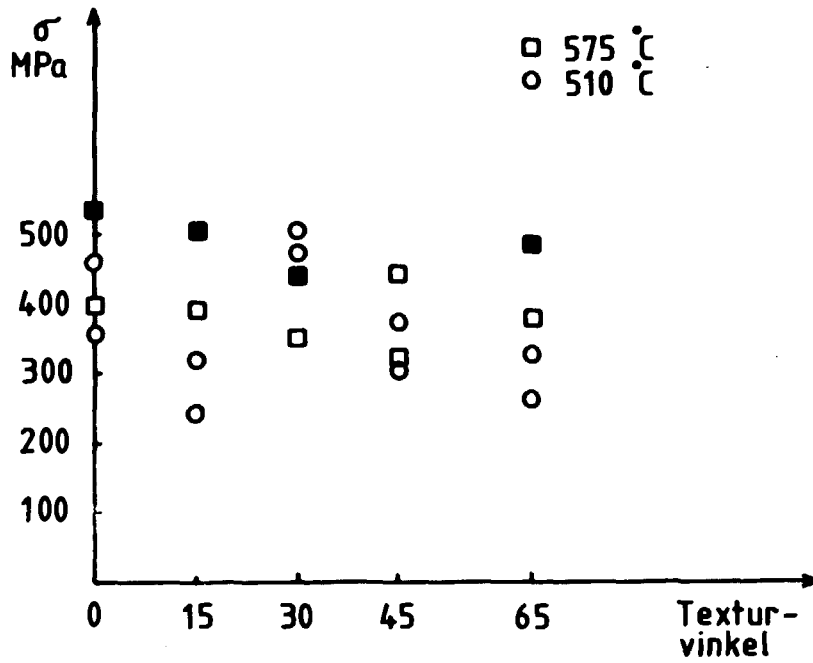


Fig. A5 Brottspänningar för prover vid 0.002 mm/min. De fyllda punkterna är prov med plastisk deformation före brott.

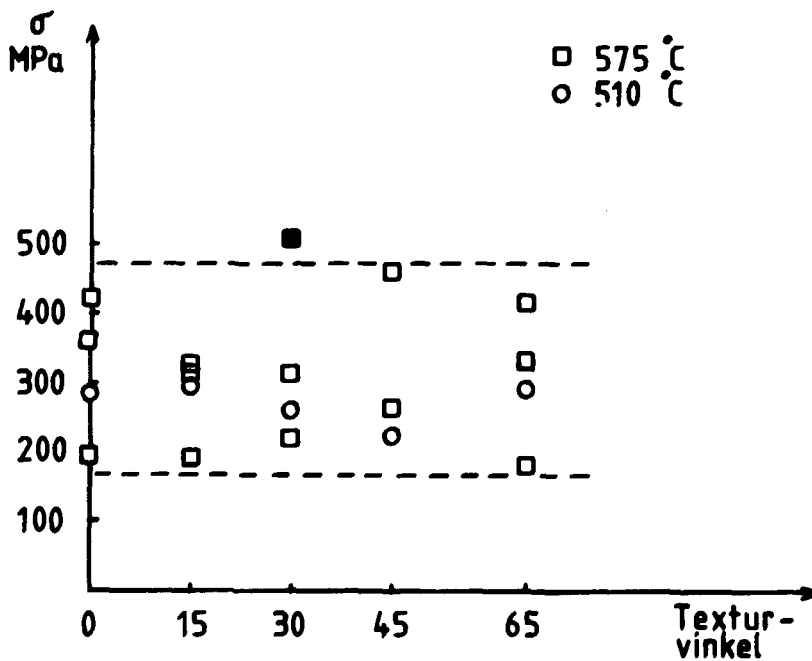


Fig. A6 Brottspänningar för prover vid 0.00077 mm/min. Den fyllda punkten representerar ett prov med plastisk deformation före brott.



Fig. A7 Oxidnoduler och ytbeläggning på prov med 30^o-textur. Den grova sprickan är ej orsakad av nodulen. 230x

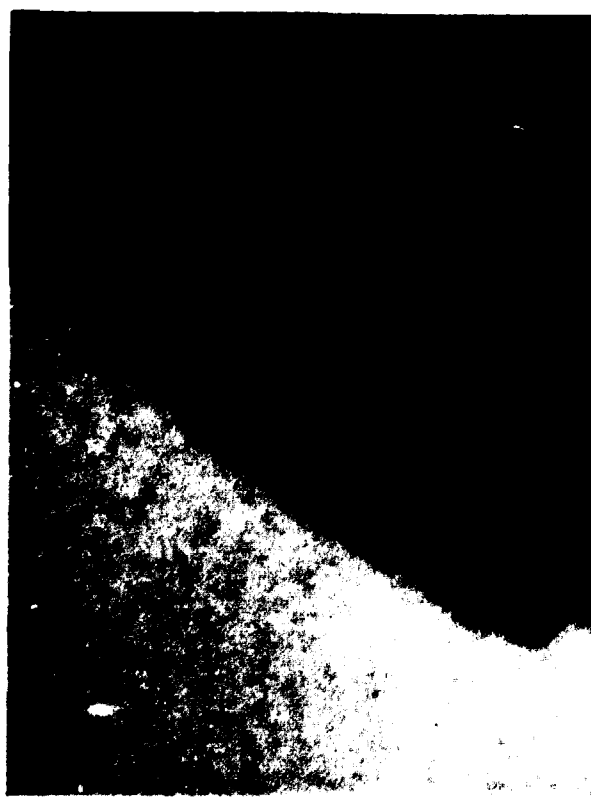


Fig. A8 Snitt genom oxidnodul på prov med 30^o-textur. 500x



Fig. A9 a Brottyta på prov med 0° textur. Lägg märke till den stora klyvytan. 230x

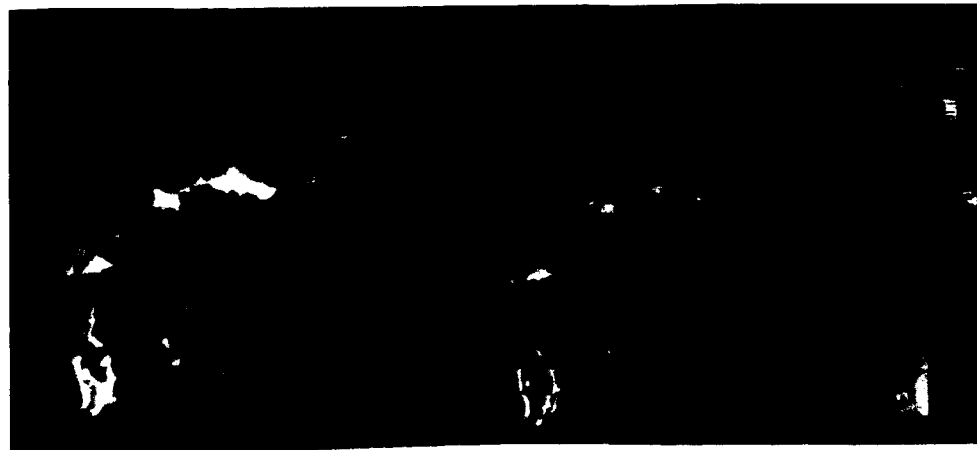


Fig. A9 b Klyvytan i detalj. Lägg märke till hur en lamell i mitten delvis flagat av, dvs sprickan går troligen fram i flera parallella klyvplan. 920x



Fig. A10 Klyvyta med fluted facets. Dessa är parallella med c-axeln (A.1). Man ser tydligt att de inte är vinkelräta mot klyvytan, dvs klyvytan är inte parallell med basplanet utan avviker från detta med en viss vinkel (15).



Fig. A11 Ytterligare exempel från brottyta på prov med 0° -textur. Här ser man hur klyvytans orientering är nära parallell med provytan. 230x

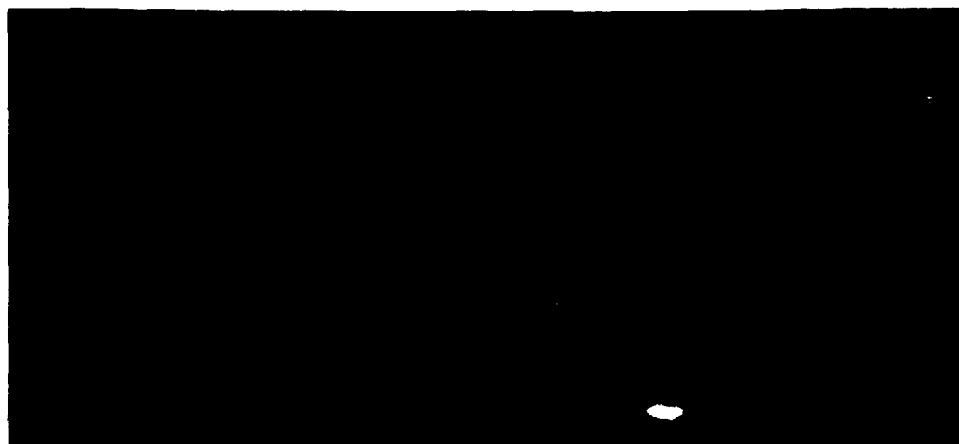


Fig. A12 Detalj av brottytan på lågduktilt prov med 30° -textur. Dimplerna är både anmärkningsvärt små och grunda. 2500x



Fig. A13 Brottyta från prov av Zr med vad som förefaller vara en spröd partikel i mitten. 225x



Fig. A14 Detalj av brottytan från Zr-prov. Den negativa rundningen samt "blåsorna" på den "spröda partikeln" indikerar att det alternativt kan vara fråga om en por.

Fig. A15 Fördelningen av brottspänningar för vid 575°C värmebehandlade prover provade vid 0.00077 mm/min anpassade till en Weibull-fördelning med $n = 2$

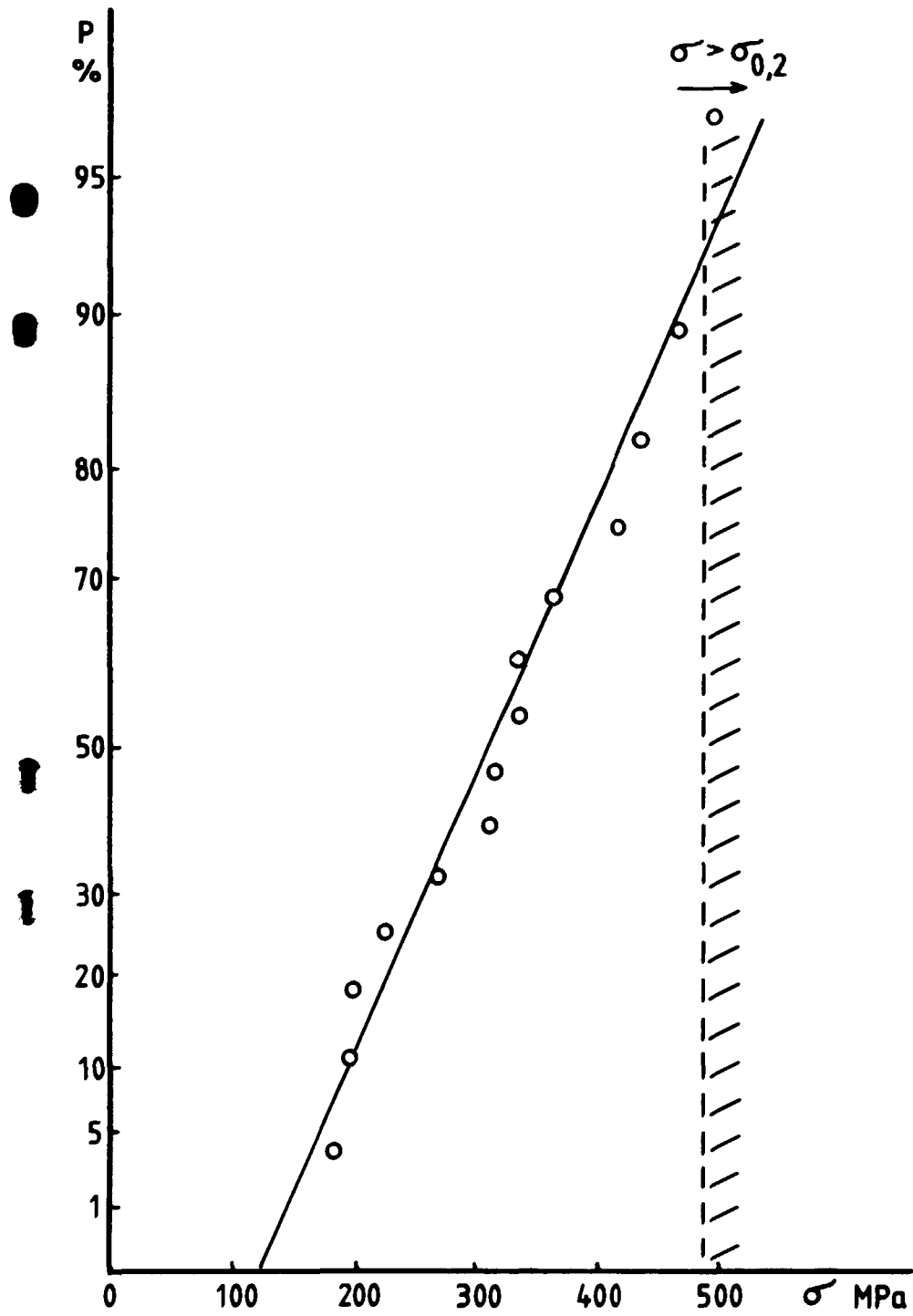
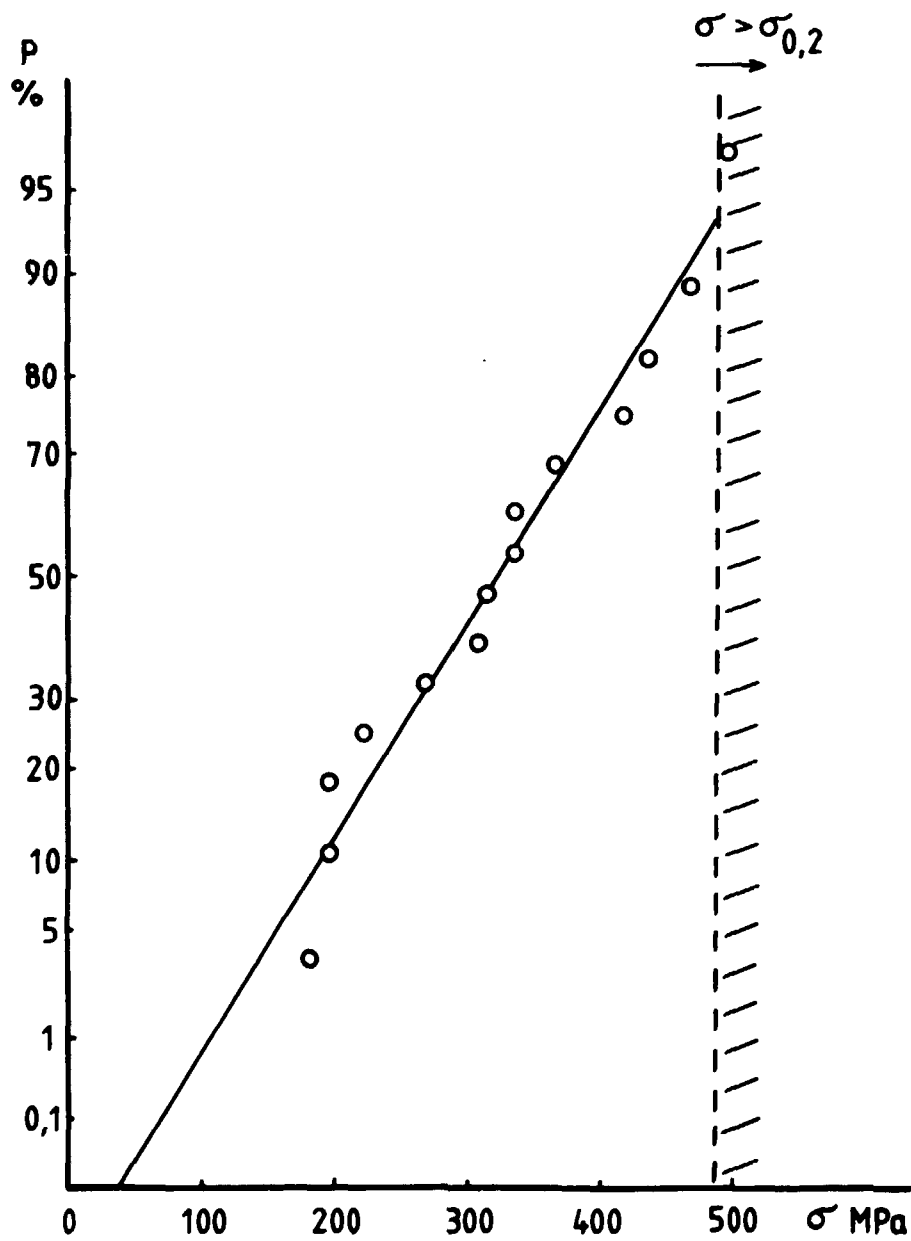


Fig. A16 Fördelningen av brottspänningar för vid 575°C värmebehandlade prover provade vid 0.00077 mm/min anpassade till en Weibullfördelning med $n = 3$



REFERENS

- A.1 I AITCHISON och B COX
Interpretation of fractographs of SCC
in hexagonal metals
Corrosion 28 (1972) p 83

STUDSVIK/K4-79/12
KI/STUDSVIK-B4

INVERKAN AV TEXTUR, VÄRMEHANDLING OCH TÖJNINGSHASTIGHET PÅ
SPÄNNINGSKORROSIONSPRICKNING I BESTRÅLAD ZIRCALOY
Slutrapport KI/STUDSVIK-B4/Zr-Brottökriterier

Kjell Pettersson, Walter Stany och Evert Hellstrand

Studsvik

Studsvik Energiteknik AB S-61182 NYKÖPING
SWEDEN Telefon 0155-80000 Telex 64013 studs