



НАЦИОНАЛЬНЫЙ
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
«КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»



Фазовые превращения в облученном сплаве 42ХНМ после отжигов при повышенных температурах, а также после быстрого отжига, имитирующего условия максимальной проектной аварии

**Б.А. Гурович, А.С. Фролов, Д.А. Мальцев, Е.А. Кулешова,
С.В. Федотова, И.В. Федотов**

Существующие проблемы

В настоящее время для реакторов ВВЭР и реакторов PWR используются твэлы с топливом из диоксида урана, а в качестве оболочек твэлов - сплавы на основе циркония. Для данных твэлов характерен ряд недостатков:

- низкая теплопроводность топлива;
- высокая рабочая температура топлива;
- ограниченная ураноемкость топлива; относительно малое время между перегрузками твэлов (что, возможно, неактуально для РЭА и российских АЭС);
- недостаточная коррозионная стойкость оболочек при взаимодействии с теплоносителем при нарушениях водно-химического режима и/или при подкипании теплоносителя;
- склонность к взаимодействию циркониевых оболочек с теплоносителем при запроектных авариях с протеканием паро-циркониевой реакции и, вследствие этого, дополнительного разогрева твэлов с образованием большого количества водорода.

После аварии на Фукусиме существующие проблемы потребовали значительного удорожания систем безопасности энергетических реакторов и, в конечном итоге, привели к снижению конкурентоспособности атомной энергетики в целом.

Вследствие этого возникла необходимость в создании толерантных твэлов.

Материаловедческий подход к созданию толерантного ТВЭЛа

Выбор материалов, гарантирующих высокие эксплуатационные характеристики, а также целостность оболочек ТВЭЛов и топлива в условиях максимальных проектных аварий и в некоторых вариантах запроектных аварий

Оболочка

- ✓ Высокая теплопроводность;
- ✓ Высокая температура плавления;
- ✓ Высокие характеристики прочности, пластичности
- ✓ Отсутствие паро-водяной реакция в аварийных ситуациях
- ✓ Отсутствие взаимодействия топлива с оболочкой
- ✓ Высокая коррозионная стойкость в среде теплоносителя
- ✓ Высокая радиационная стойкость
- ✓ КТР близкий к топливу

Топливо

- ✓ Оптимальная теплопроводность,
- ✓ Высокая ураноемкость
- ✓ Оптимальные механические свойства
- ✓ Низкое распухание или способность к аккомодации
- ✓ Фазовая стабильность
- ✓ Высокое сечение деления;
- ✓ Низкое паразитное поглощение
- ✓ КТР близкий к оболочке

Рассматриваемое решение

Особо тонкостенные ТВЭЛы без зазора с оболочкой и с диффузионным контактом с топливом

Кандидатные материалы

Оболочка из сплава 42ХНМ

Топливо композитное

Химический состав и физические свойства оболочечного сплава 42ХНМ

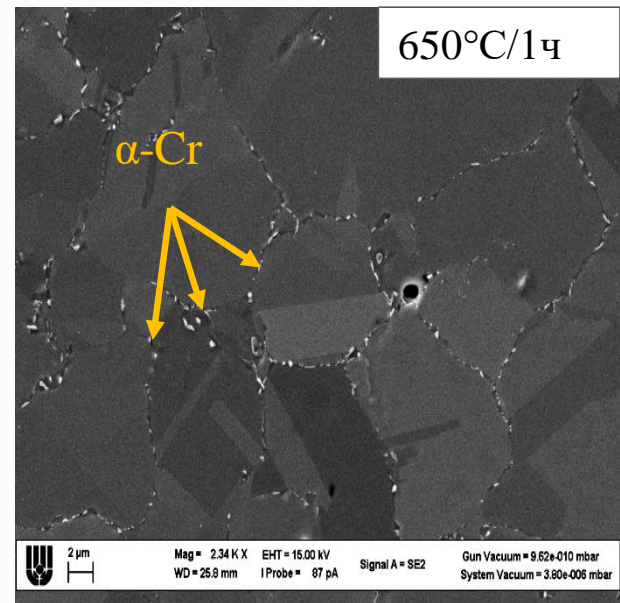
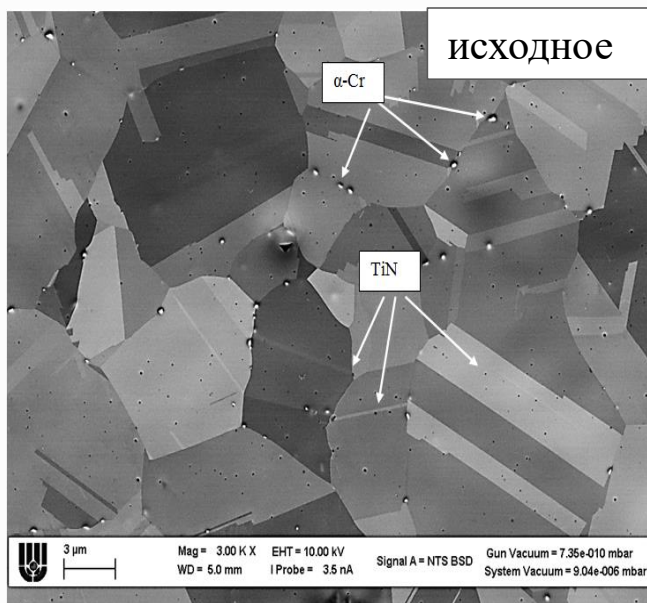
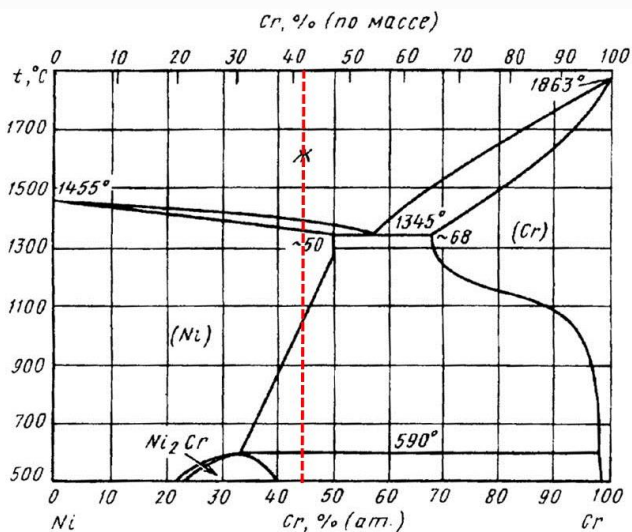
В СССР и затем в России были созданы значительные заделы и накоплен опыт испытаний различных видов топлива и использования различных оболочечных материалов, в частности сплава 42ХНМ (разработка ВНИИНМ) в качестве оболочек твэлов транспортных реакторов. Опыт показал, что эксплуатация сплава 42ХНМ в качестве материала оболочек твэлов ни разу не сопровождалась их разгерметизацией, в том числе, при испытаниях ТВС с оболочками толщиной 0,15 мм.

Марочный состав сплава 42ХНМ по ТУ 14-1-5436-2001

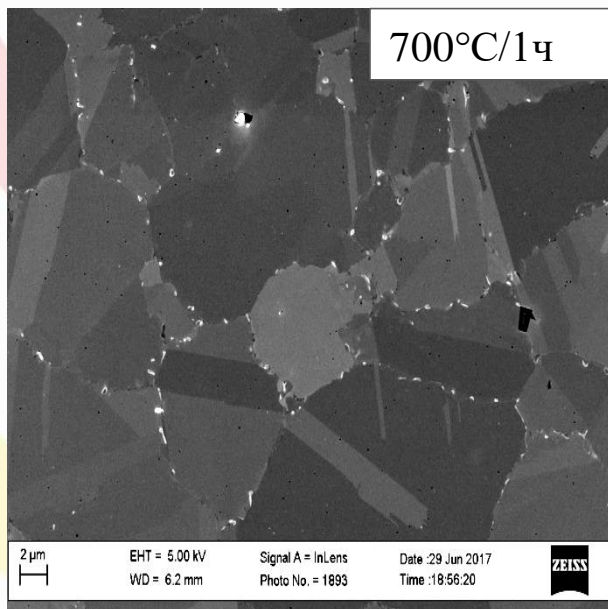
Элемент, массовая доля элемента, %											
С	Si	Mn	S	P	Cr	Ni	Mo	W	Fe	Al	Ti
не более					40,5- 43,5	Осн.	1,0- 1,5	0,05- 0,30	не более		
0,03	0,25	0,2	0,01	0,01					0,6	0,4	0,25

Характеристика	Значение
Плотность при 20 °С	8,1 г/см ³
Температура плавления	1345 °С
Значение сечения поглощения тепловых нейтронов	4,0±0,2 барн
Коэффициент теплопроводности при температурах от 100 до 600 °С	10,0 - 23,0 Вт/(м·град)
Коэффициент линейного расширения при температурах от 100 до 800 °С	(15,1-18,4)·10 ⁶ град ⁻¹
Модуль упругости при температурах от 20 до 700 °С	225-179 ГПа
Теплоемкость при температурах от 20 до 800 °С	24,8-33,4 Дж/(моль·град)

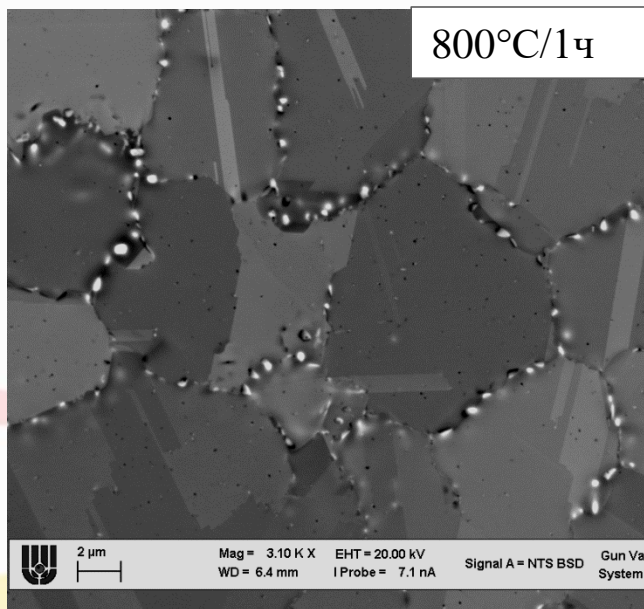
Сплав 42ХНМ **исходном состоянии** после изотермических выдержек (1ч)



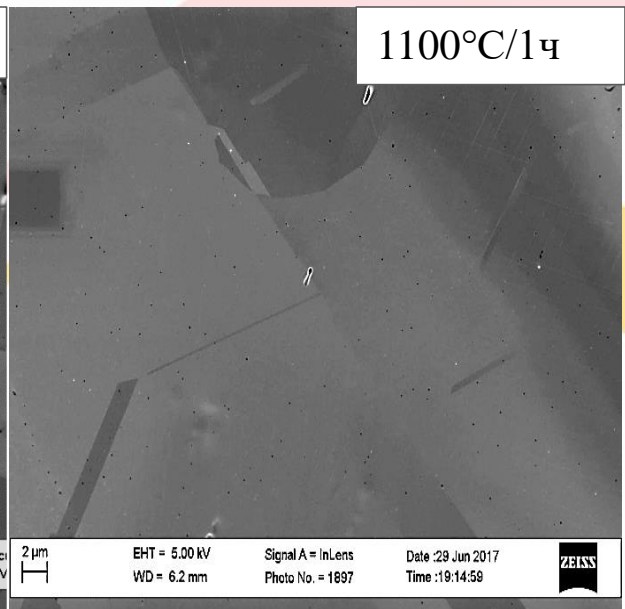
Доля $\alpha\text{-Cr}$ ~14.5%



Доля $\alpha\text{-Cr}$ ~12%



Доля $\alpha\text{-Cr}$ ~9%



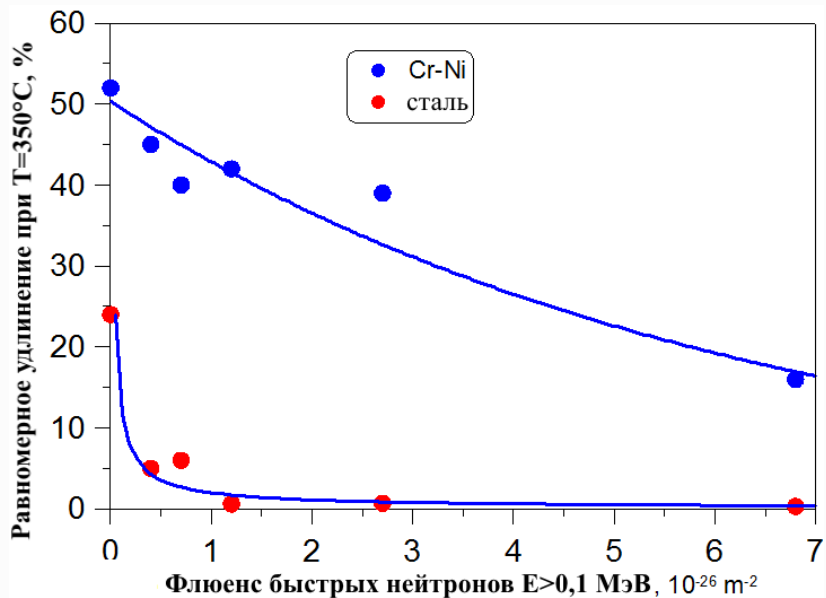
Доля $\alpha\text{-Cr}$ 0%

ОБОЛОЧКА ТОЛЕРАНТНОГО ТВЭЛА

сплав 42ХНМ

Сплав 42ХНМ обладает уникальным комплексом свойств:

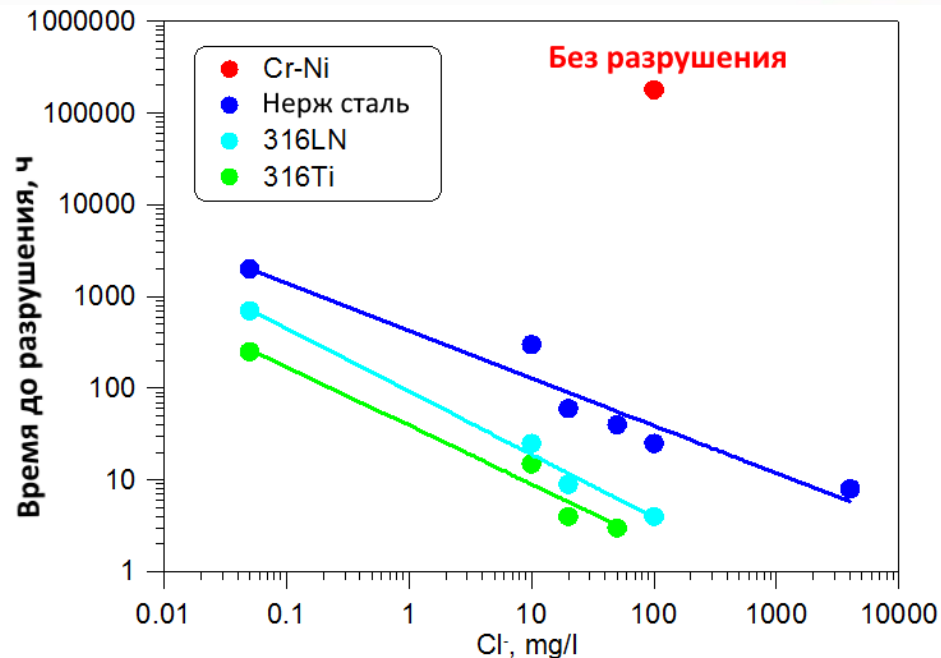
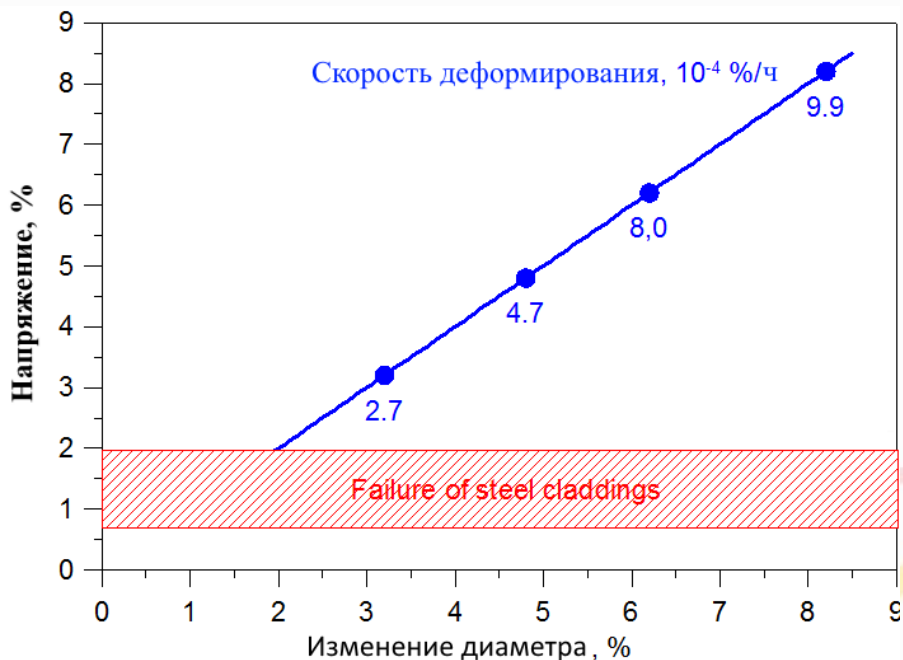
- при нейтронном облучении до дозы 35 сна сплав практически не подвержен воздействию низкотемпературного радиационного охрупчивания при температурах 350-400°С;
- коррозионная стойкость сплава в воде высоких параметров (в т. ч. среда теплоносителя, морская вода и др.) значительно превосходит нержавеющие стали и сплавы и а также сплавы циркония;
- обладает повышенными прочностными и пластическими характеристиками относительно аустенитных сталей и сплавов, а также сплавов на основе Zr ;
- высокотехнологичен;
- Сравнительные расчеты нейтронных потерь в оболочках твэлов ВВЭР-1000 из Zr сплава стандартной толщины и из сплава 42ХНМ толщиной 0,15 мм, выполненные в НИЦ «Курчатовский институт», показали, что нейтронные потери в случае 42ХНМ превышают потери в Zr-оболочках не более чем на 3%.



Стойкость к паро-водяной реакции

Материал	Условия испытания	% материала, переходящего в оксид
Zr губчатый	1200°C/35 мин Паро-водяная смесь	91
42ХНМ	1200°C/35 мин Паро-водяная смесь	<1

Стойкость к коррозионному растрескиванию

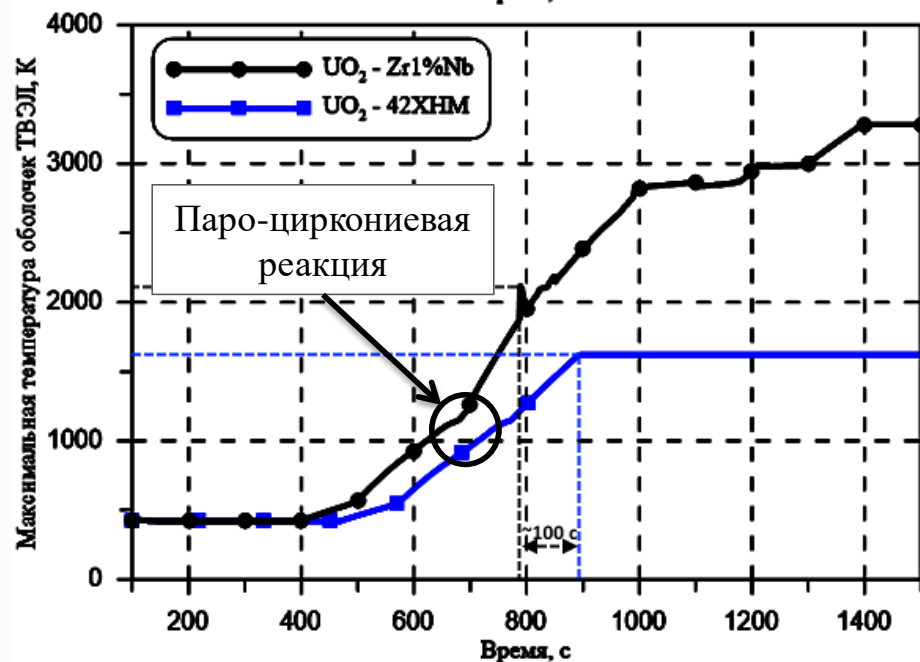
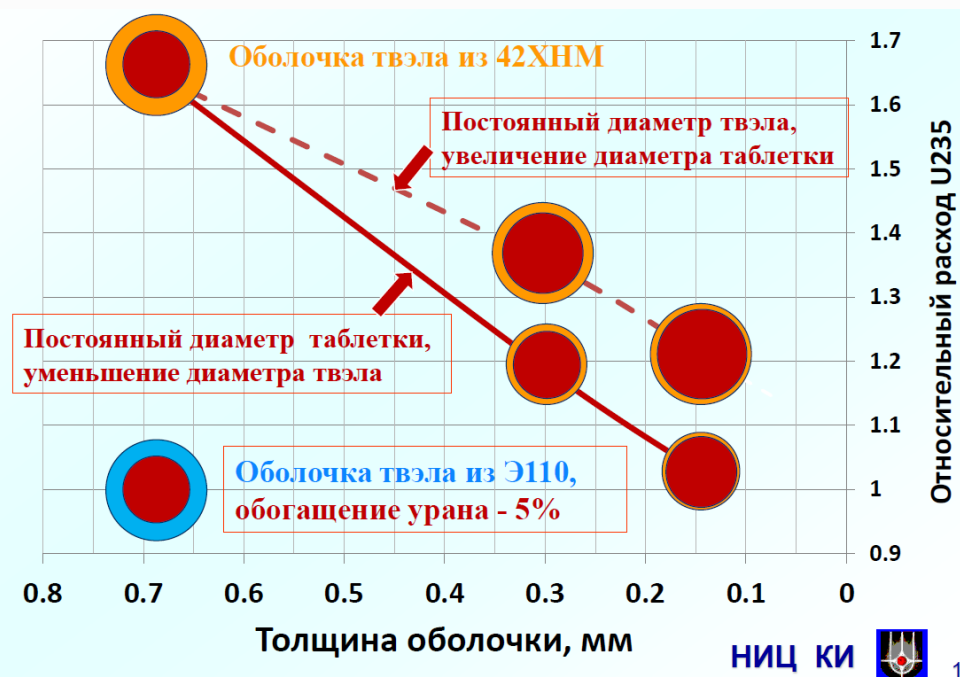


* Данные ВНИИНМ

Сравнительные данные для оболочек ТВЭЛ из сплавов 42ХНМ и Zr

Влияние замены материала оболочки ТВЭЛ на расход U^{235} при сохранении энергопотенциала ТВС

Температура оболочки ТВЭЛ при запроектной аварии с разрывом ГЦТ (ТВЭЛ с $Q_1=380$ Вт/см)

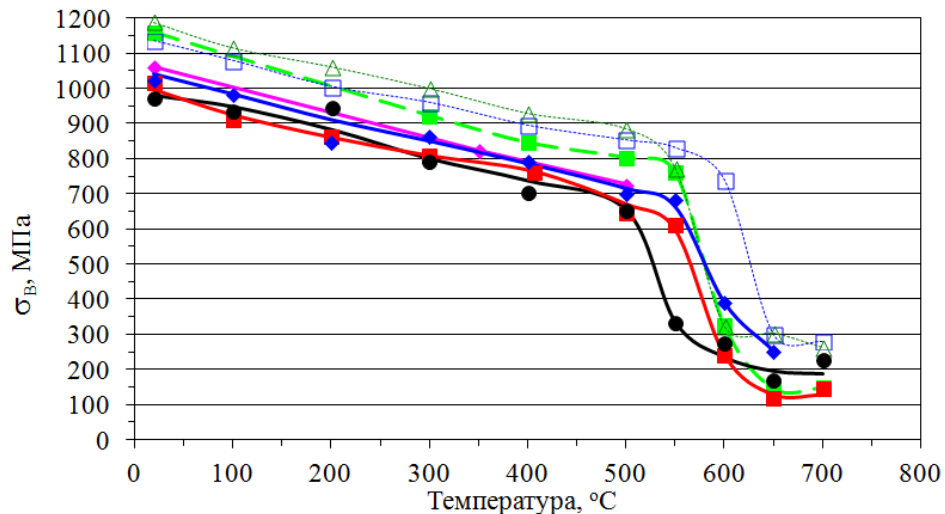


Нейтронные потери в случае оболочек ТВЭЛов ВВЭР-1000 из сплава **42ХНМ** толщиной **0,15** мм превышают потери в Zr-оболочках стандартной толщины не более чем на 3%.

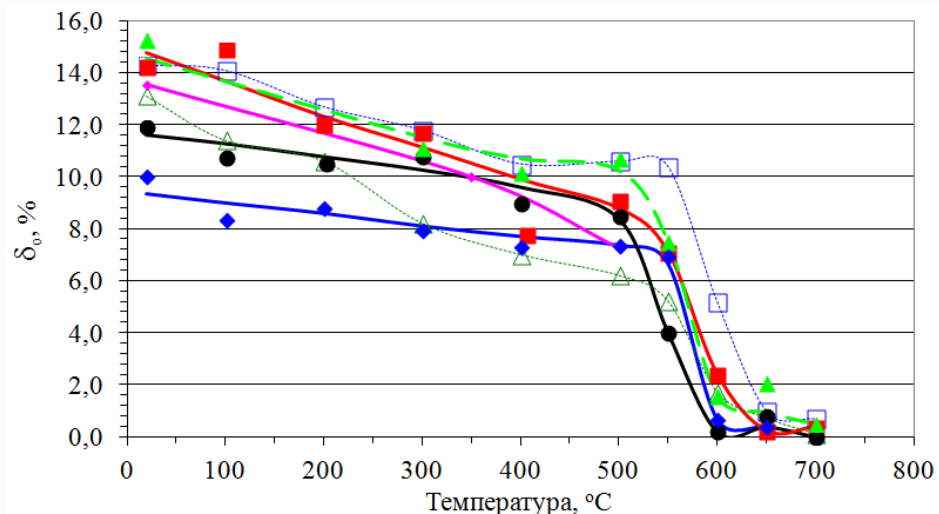
При запроектной аварии с разрывом ГЦТ расплавление оболочки из Zr сплава наступает на ~ 100 секунд раньше, чем оболочки из сплава 42ХНМ из-за пароциркониевой реакции, несмотря на более высокую $T_{пл}$ сплава Zr ($\Delta T_{пл} \sim 500^\circ\text{C}$).

Существующая проблема сплава 42ХНМ – провал пластичности в интервале температур (600- 800)°С.

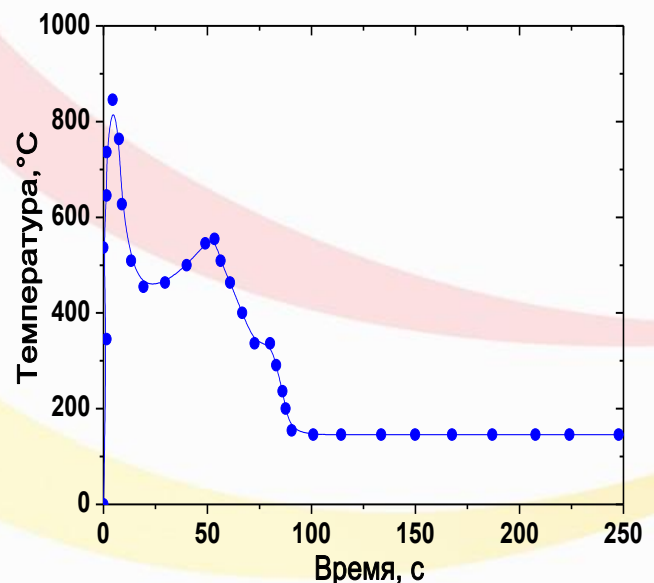
Временный предел прочности (σ_B)*



Общее относительное удлинение (δ_0)*



*** Данные ГНЦ НИИАР (Результаты испытаний после выдержки при $T_{исп}$ в течение 5-15 мин.)**



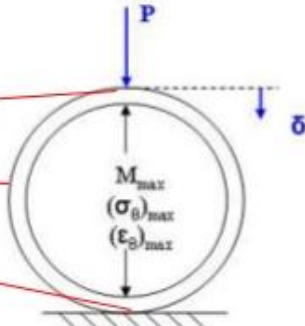
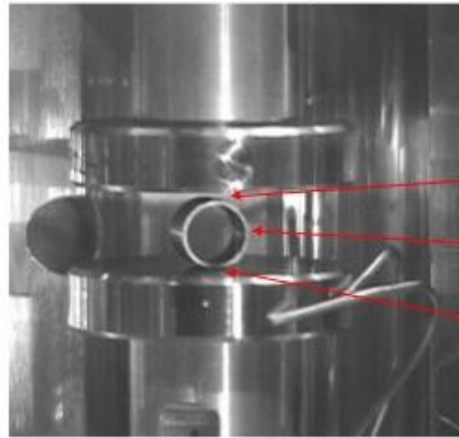
Температурно-временной режим проектной аварии (НИЦ КИ)

Требования к испытаниям оболочек твэлов из Zr сплавов. Испытание на сжатие

Нормы США (10 CFR 50.46) и РФ (НП-082-07): Для Zr оболочек в ходе аварии типа LOCA должно обеспечиваться $T \leq \sim 1200^\circ\text{C}$ и степень окисления, меньшую, чем при которой оболочка становится хрупкой.

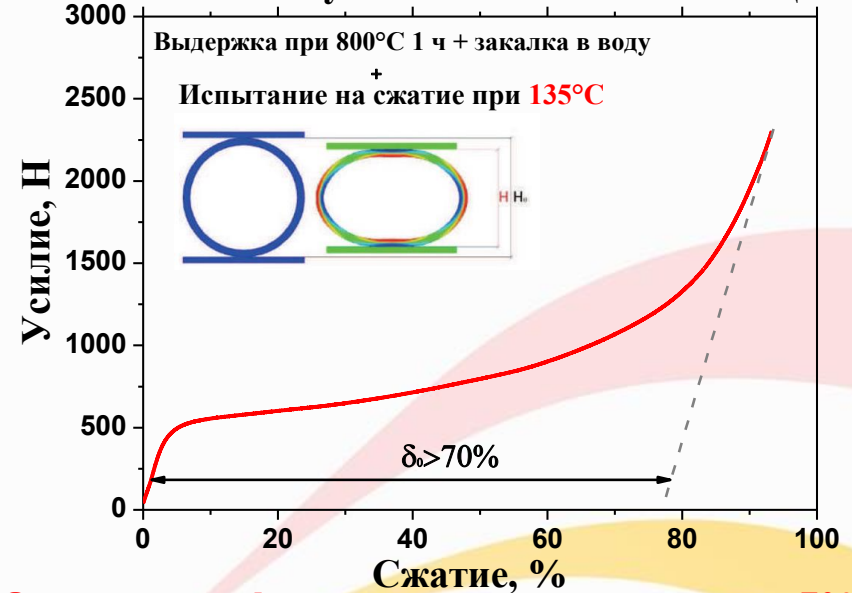
Традиционно проводят испытания колец на сжатие при **135°C** по критерию **2% условной остаточной деформации** [2, 3]. Критерии основаны на ошибках определения изменения внешнего диаметра в момент разрушения по кривой нагружения.

Схема проведения испытания колец на сжатие [1]



Для сохранения целостности оболочки при аварии типа LOCA необходимо наличие какой-либо ненулевой пластичности

Испытание облученного 42ХНМ в НИЦ КИ



Остаточная деформация внешнего диаметра $>70\%$

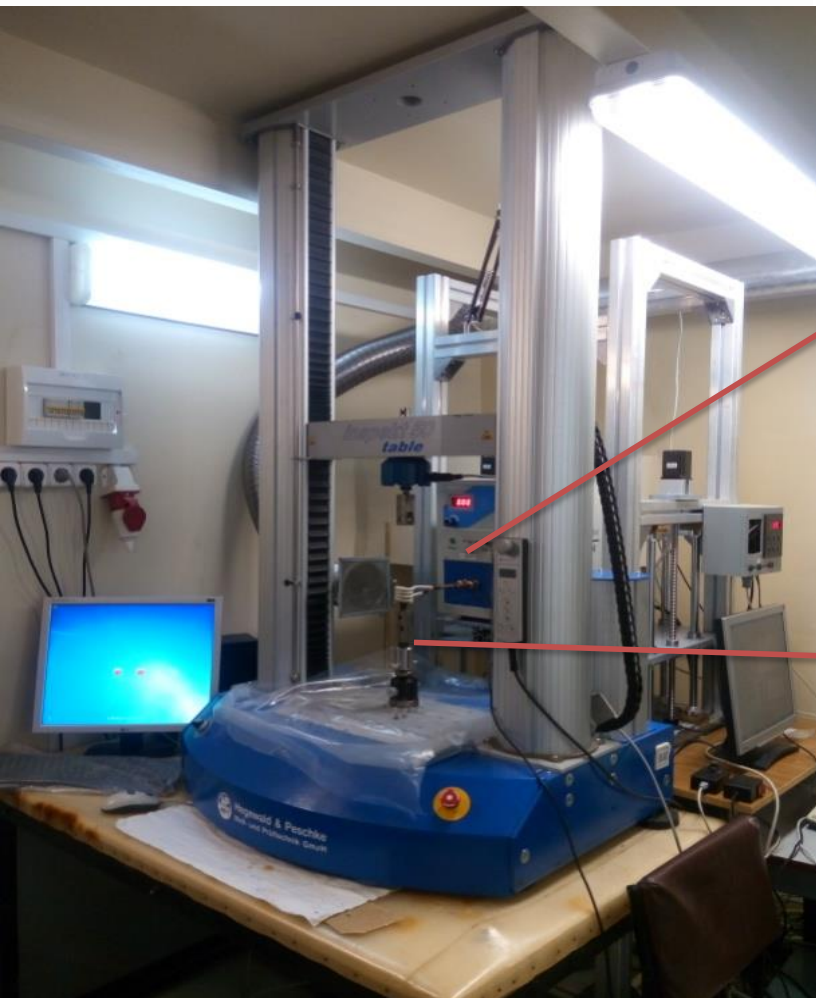


Снимок образца после испытания

[1] Billone M. DOE-UFD Annual Meeting UNLV. 2016

[2] Billone M. et al. U.S. Nuclear Regulatory Commission (NUREG/CR-5967). 2008.

[3] Regulatory Guide 1.223 U.S. Nuclear Regulatory Commission Office of Nuclear Regulatory Research.



**Индукционный
нагреватель
ВЧ-15А**



**Тепловизор
FLIR A315
(до 1200°)**

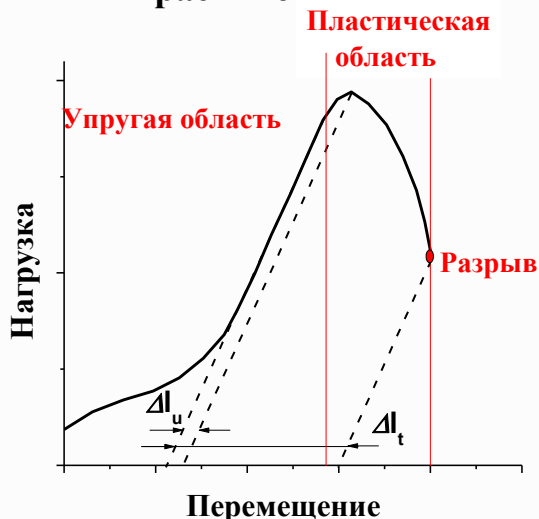


**Разработанные
захваты**

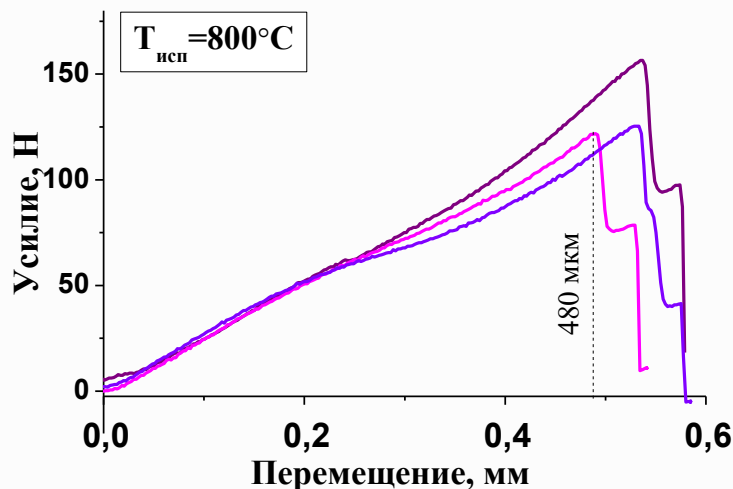
Разработаны специальные захваты с ответной частью, повышающей прочность опор, и модифицированным сечением опоры, снижающим вклад концентраторов напряжений (краев опор) в характер разрушения кольца. Для нагрева использовался высокочастотный индукционный нагреватель, для которого разработан специальный манипулятор. Контроль температуры проводился при помощи тепловизора.

Испытание облученных колец на растяжение

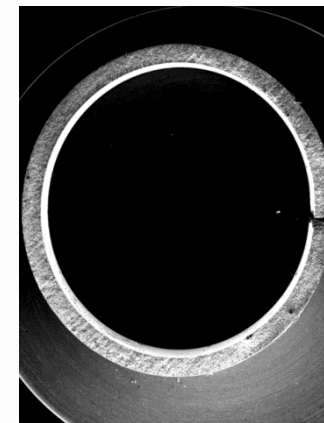
Традиционная схема обработки кривых растяжения колец



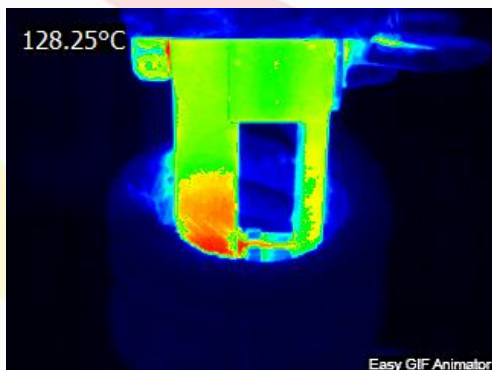
Кривые растяжения облученных колец при 800°C



Снимок испытанного облученного кольца

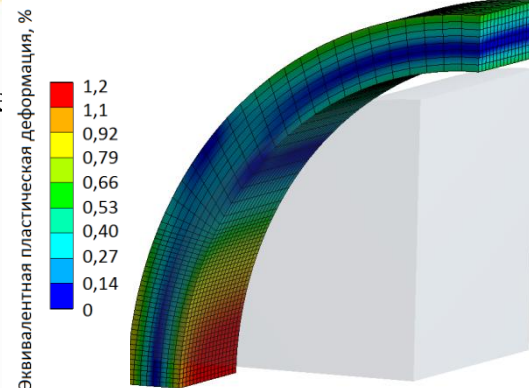


По традиционной схеме обработки кривых нагружения, облученное кольцо разрушилось в упругой области, так как не был достигнут условный предел текучести. Однако после испытаний наблюдается эллиптичность кольца, что свидетельствует о прошедшей локальной пластической деформации, то есть в данной области был превышен предел текучести материала. **Определение пластичности по кривым растяжения не дает возможности определить локальную пластическую деформацию материала колец**



Температурная карта нагрева

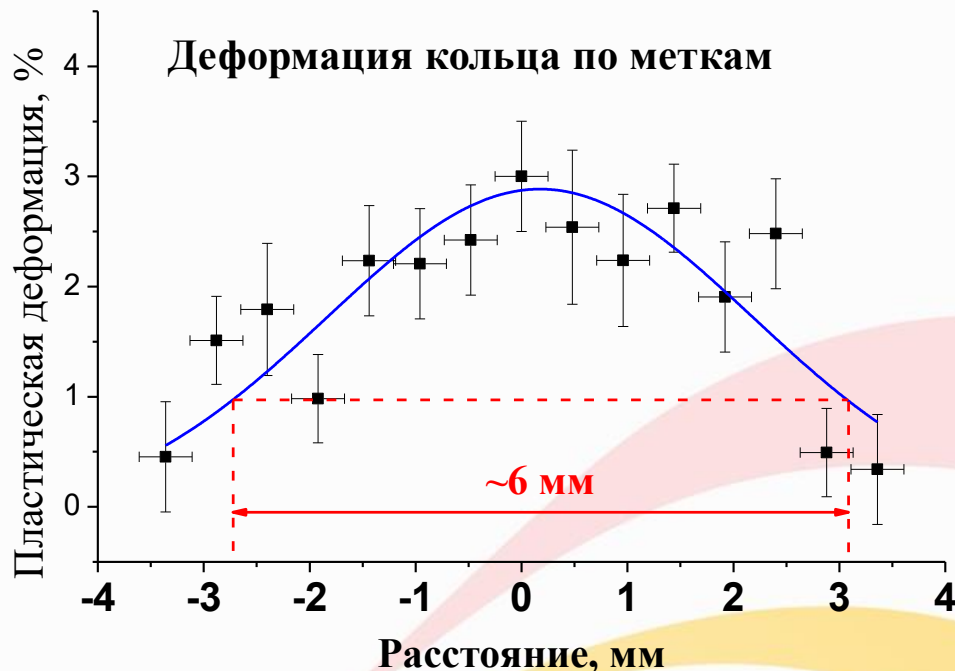
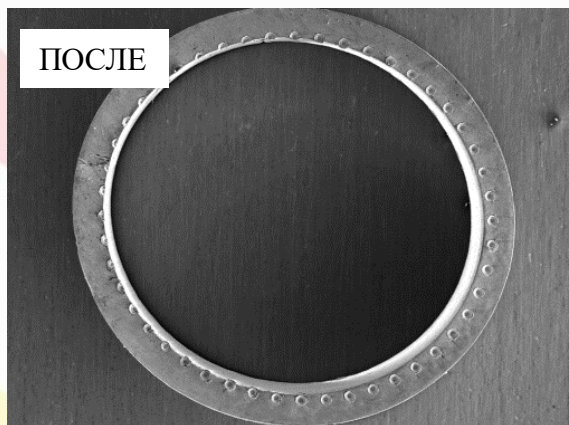
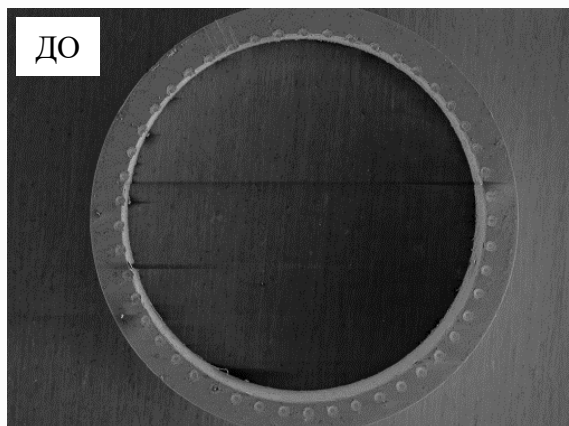
Качественное распределение пластической деформации в кольце при растяжении до 500 мкм. (Расчеты методом конечных элементов)



Предложенная оценка локальной пластической деформации колец

Для оценки пластической деформации на исходных кольцах расставлены метки при помощи ЧПУ станка. Кольца растянуты до перемещения захватов ~ 500 мкм **при 800°C** . Пластическая деформация оценена по изменению расстояния между метками и изменению длины периметра.

Изменение формы исходных колец



Для **исходного кольца** из сплава 42ХНМ после испытания при $T=800^\circ\text{C}$ остаточная деформация внутреннего диаметра в направлении растяжения составляет ~ 350 мкм ($\sim 5\%$). Этому соответствует удлинение полупериметра на ~ 200 мкм. Отнесение данной величины к рабочей области ~ 6 мм дает **пластическую деформацию $\sim 3,3\%$** .

Оценка локальной пластической деформации облученных колец

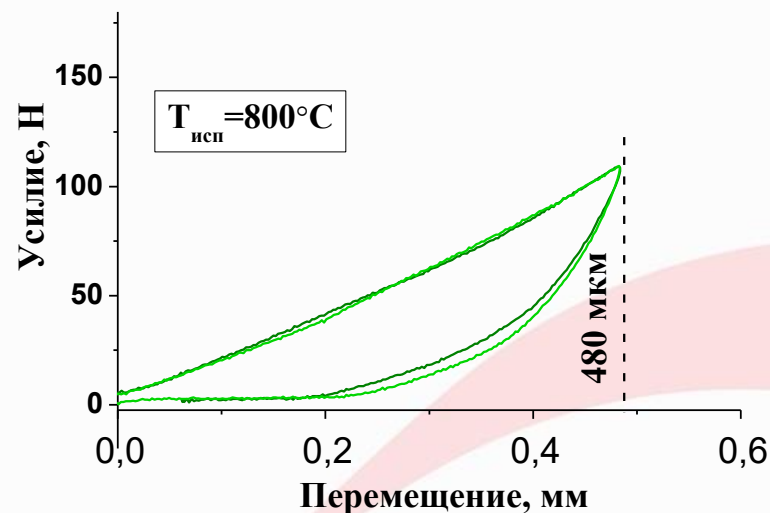
Для оценки пластической деформации облученных колец расставлены метки при помощи твердомера. Кольца растянуты до перемещения захватов 480 мкм при 800°C.

Остаточная деформация внутреннего диаметра в направлении растяжения:

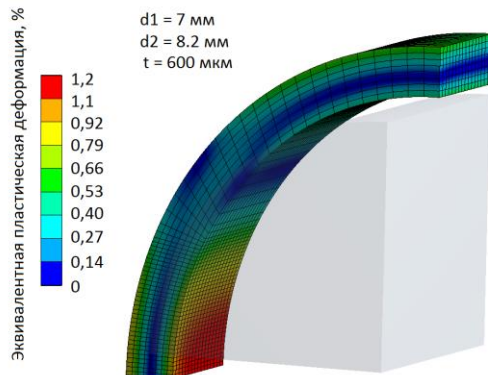
~170 мкм (~2,6%),

Данное значение свидетельствует о наличии остаточной пластичности облученного 42ХНМ при испытаниях при 800°C

Кривые растяжения **облученных колец при 800°C без разрыва со снятием нагрузки**

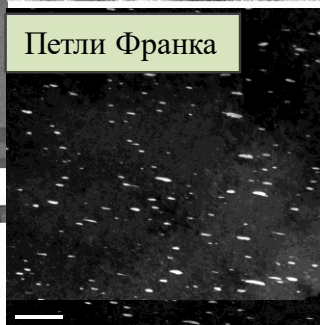
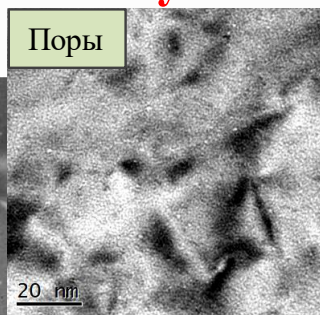
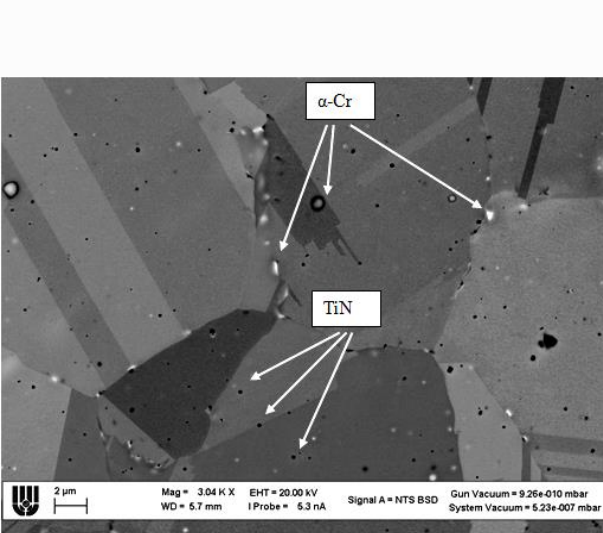


Расчетное распределение пластической деформации в облученном кольце



Свойства материала заданы таким образом, чтобы растяжение на известное расстояние (480 мкм) приводило к известному значению остаточной деформации диаметра (170 мкм). При этом модуль упругости 160 ГПа, предел текучести 200 МПа, тангенциальный модуль 80 ГПа.

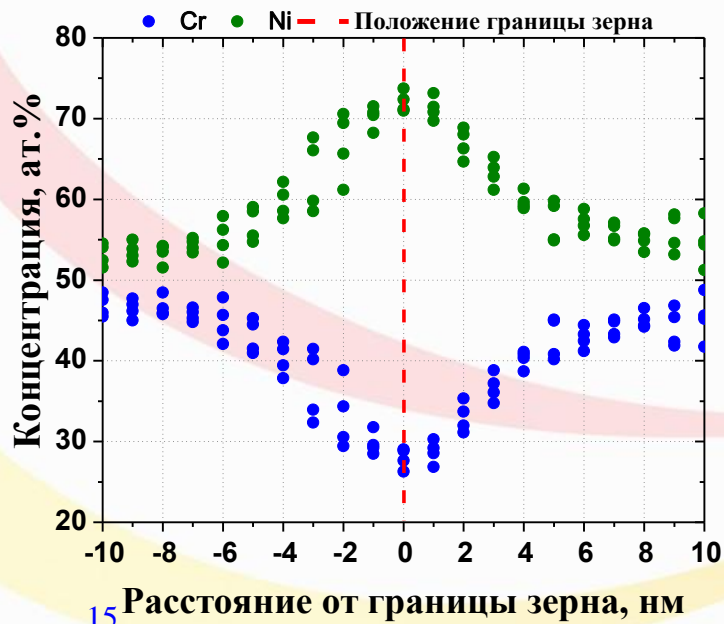
Сплав 42ХНМ в облученном состоянии ($F=1.5 \cdot 10^{26} \text{ н/м}^2$)



$\alpha\text{-Cr}$, 10^{17} м^{-3}	поры, 10^{21} м^{-3}	Распухание S, %	петли, 10^{21} м^{-3}
$1,9 \pm 0,2$	48 ± 12	$0,038 \pm 0,011$	$5,5 \pm 1,1$

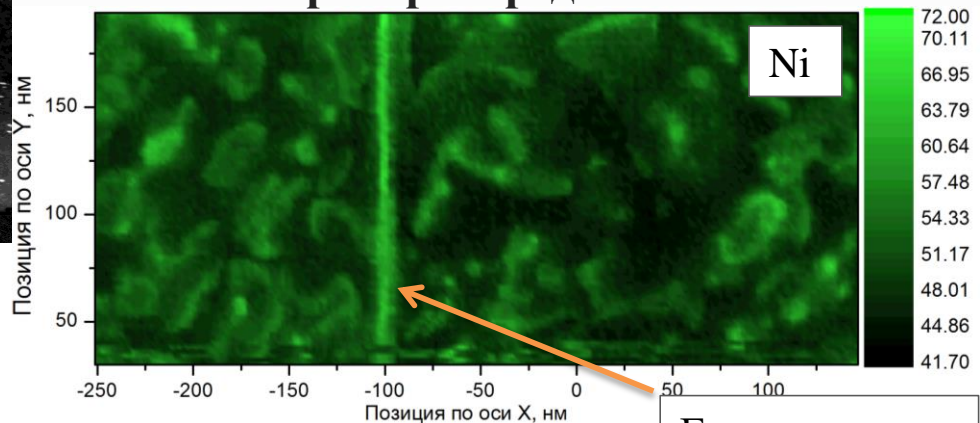
SEM-изображение

РИС

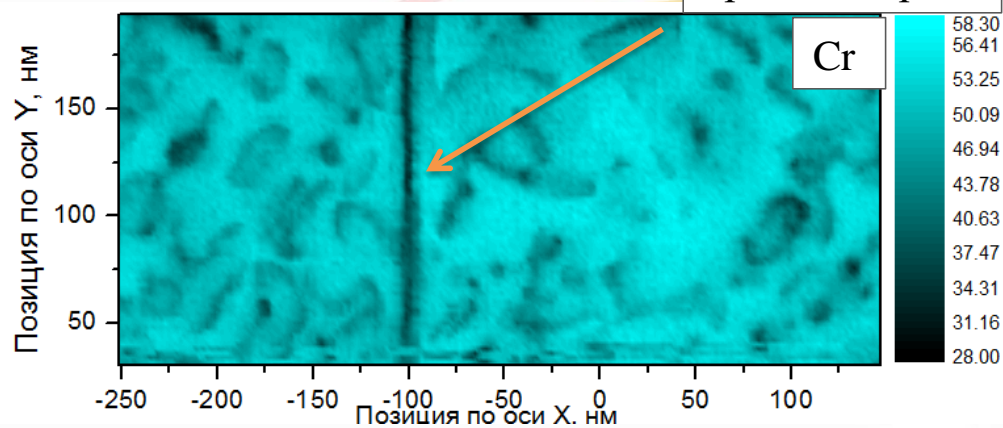


15 Расстояние от границы зерна, нм

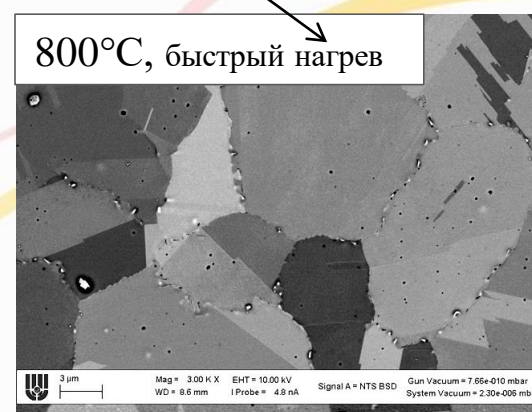
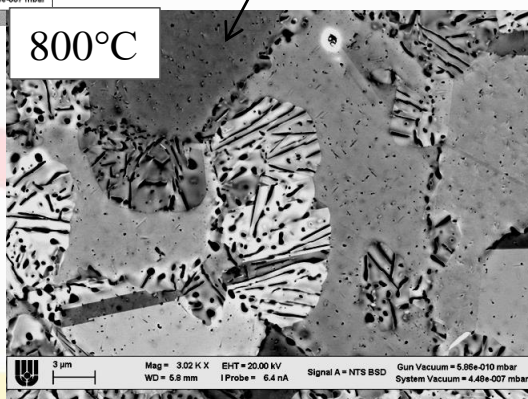
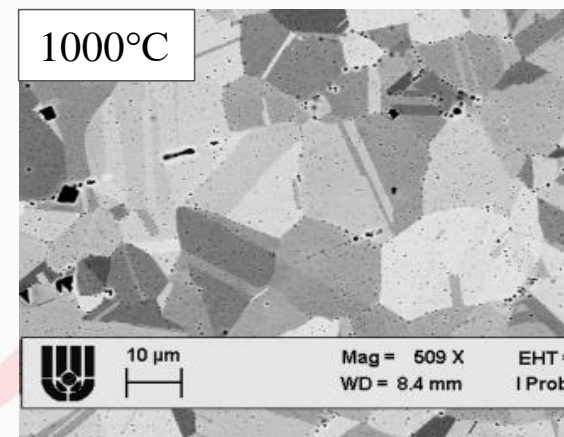
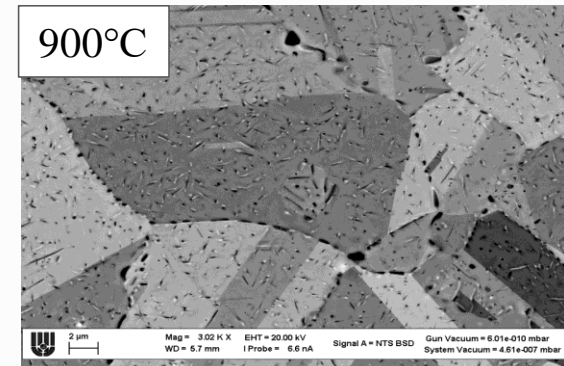
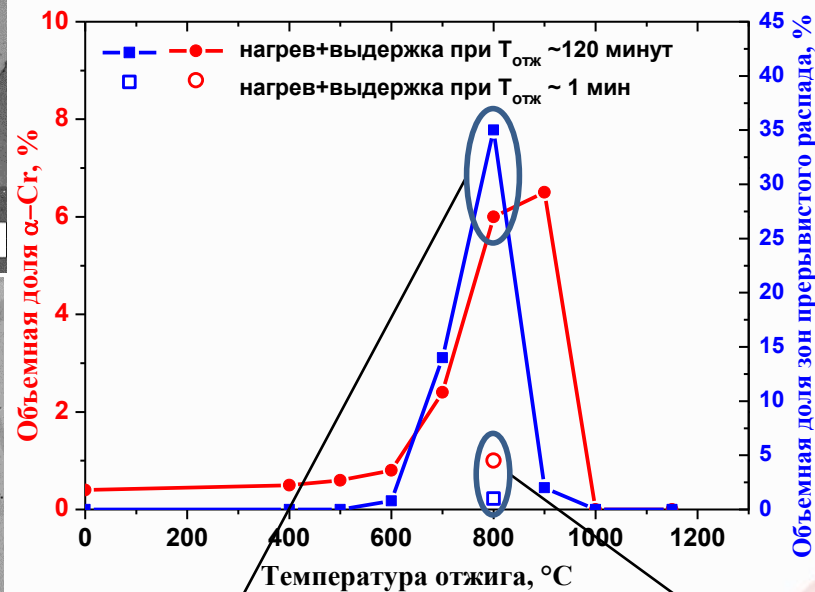
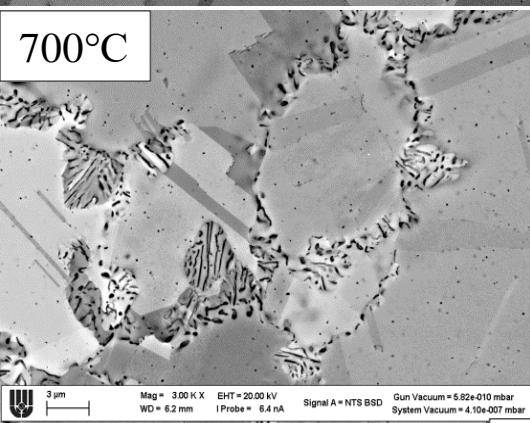
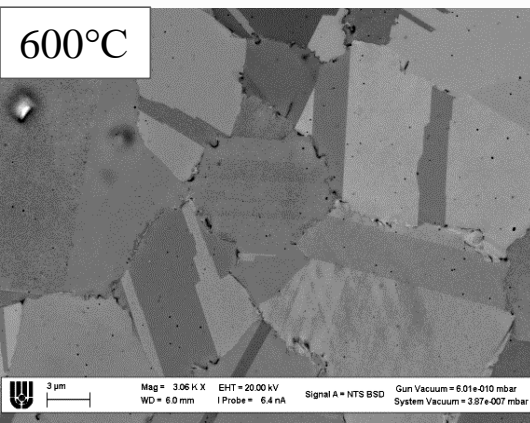
EELS-карты распределения элементов



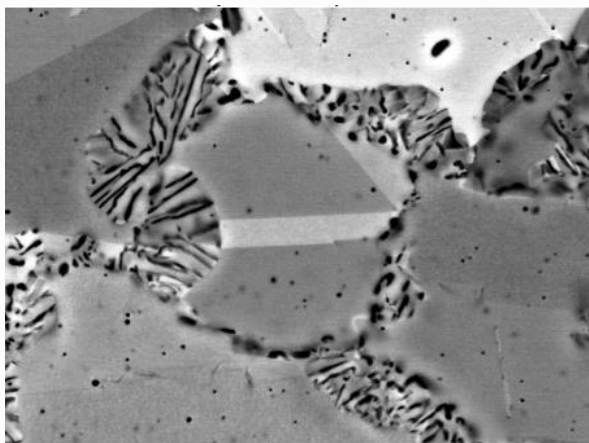
Граница зерна



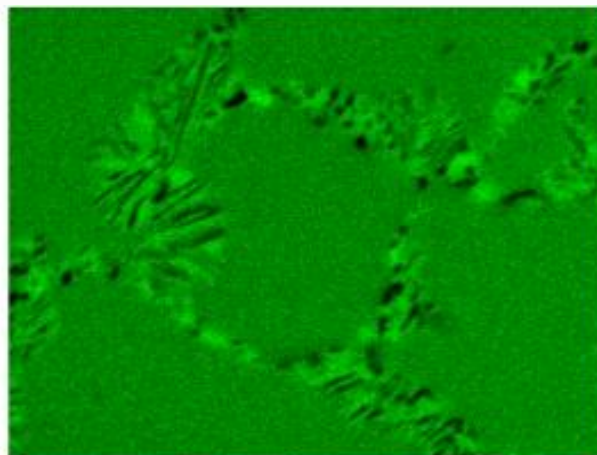
Объемная доля вторичных фаз/зон прерывистого распада в образцах облученных ($F=(1.5-1.7)*10^{26}$ м⁻²) оболочек пэлов после различных термических обработок



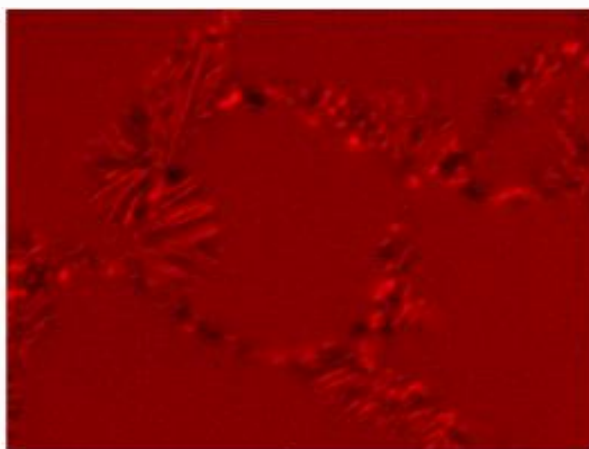
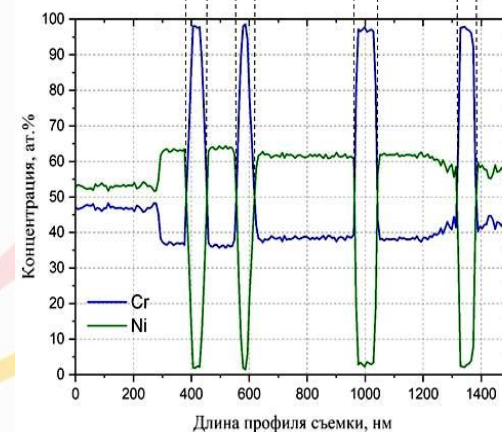
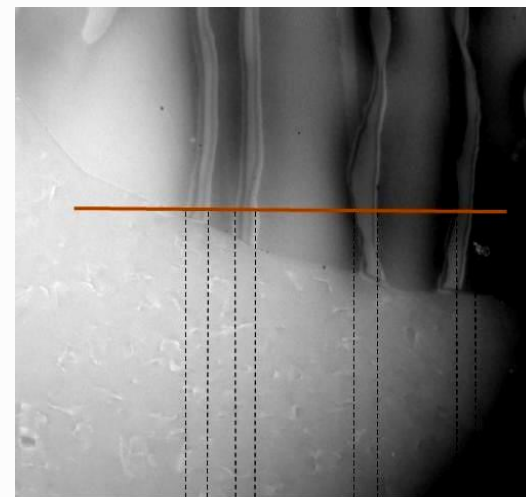
Прерывистый распад в облученном сплаве 42ХНМ



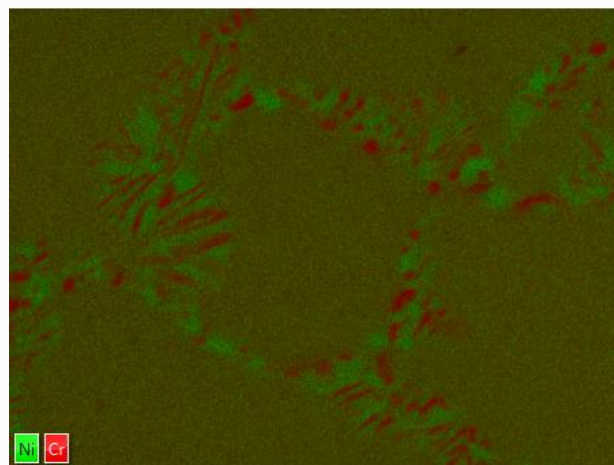
электронное изображение



Ni



Cr



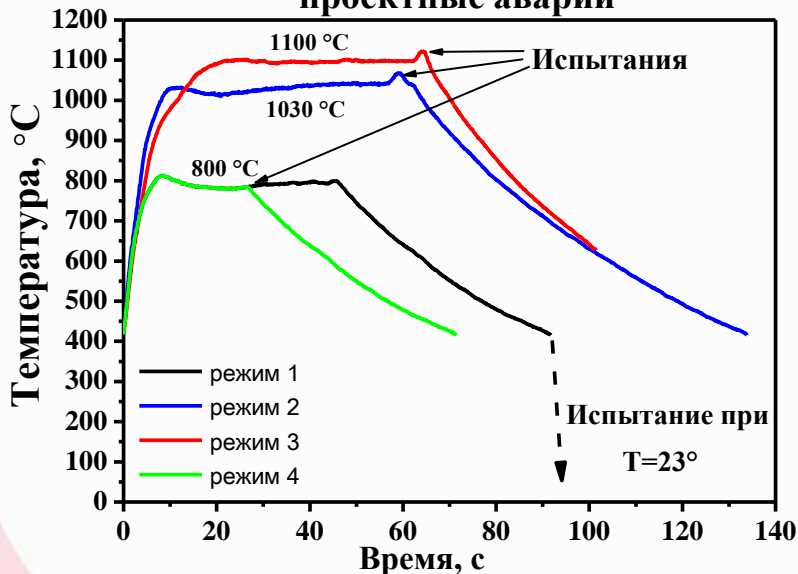
двуслойная карта Ni-Cr

Карты распределения химических элементов в образце облученной оболочки пэла из сплава 42ХНМ после отжига при температуре 800°C в течение 1 ч и последующей закалкой в воду

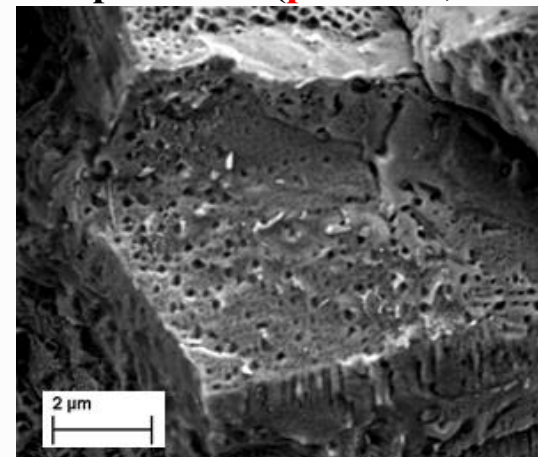
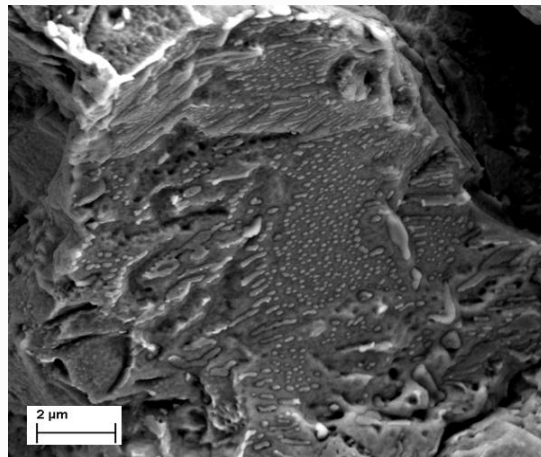
Профиль **распределения элементов**, вдоль линии, проходящей через область прерывистого распада

при температурах **(600-800)°C** и временах выдержки, соответствующих сценарию проектной аварии

Термограммы, имитирующие проектные аварии



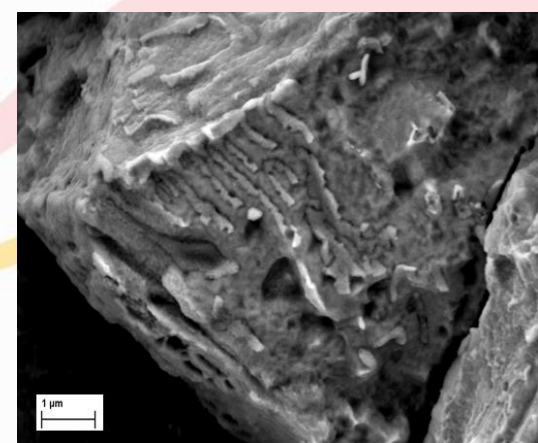
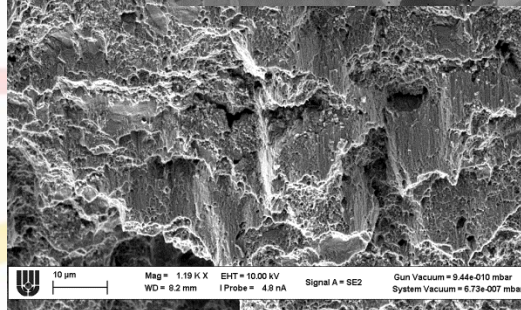
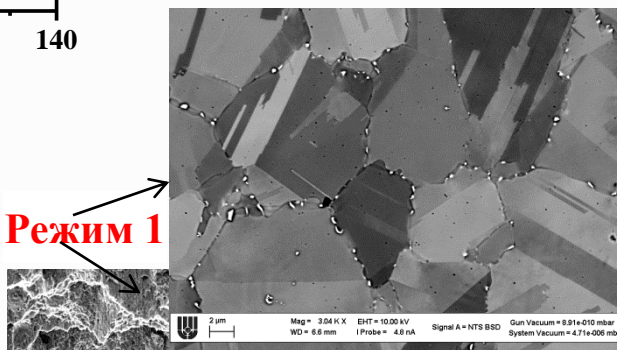
Типичные участки разрушения после имитационных испытаний при 800°C (**режим 4**)



Результаты механических испытаний после имитационных нагревов

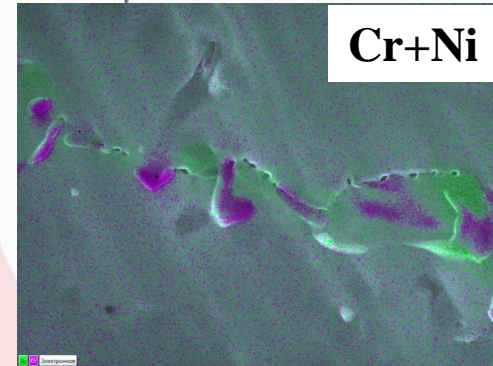
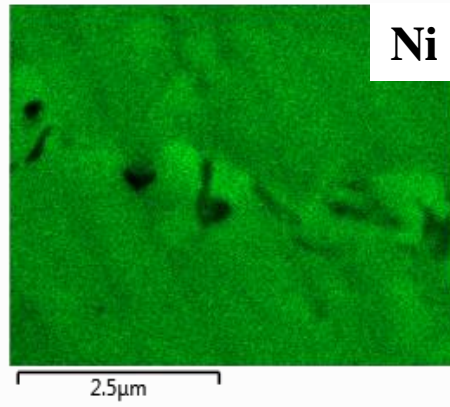
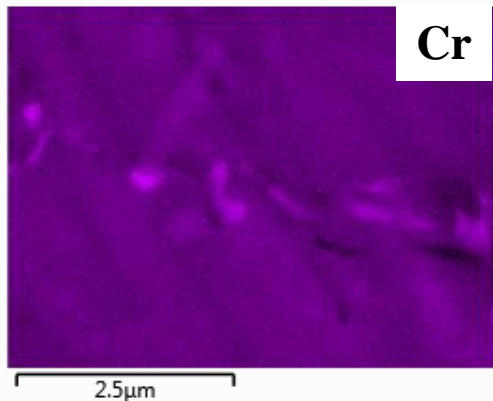
Режим	1	2	3	4
$T_{нагр}, °C$	800	1030	1100	800
$T_{исп}, °C$	23	1030	1100	800
$\sigma_{0.2}, МПа$	701	101	64	~56
$\sigma_B, МПа$	965	106	67	~56
$\delta_p, \%$	21.2	0.78	0.6	-
$\delta_o, \%$	25.1	1.86	3.6	2,5

Режим 1



После быстрого нагрева до 800°C и охлаждения до комнатной температуры структура и пластичность восстанавливаются

Разрушение по границе выделений в сплаве 42ХНМ в облученном состоянии ($F=1.5 \cdot 10^{26} \text{ н/м}^2$) после испытаний при 800°/40 сек



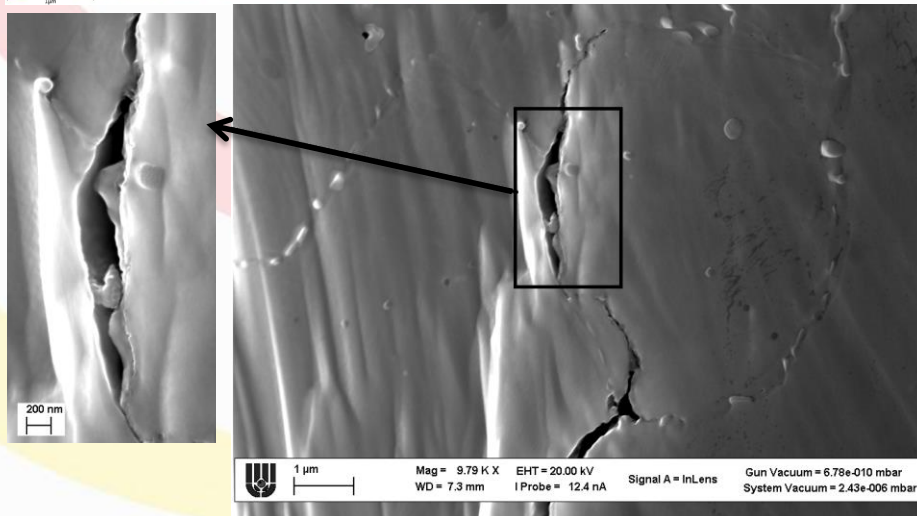
Материал	КТР, $10^{-6} \text{ град}^{-1}$ при 800°С
42ХНМ	18,4
α -Cr	11

Провал пластичности облученного сплава 42ХНМ в интервале температур (600-900)°С обусловлен образованием грубых выделений α -Cr и формированием зон прерывистого распада (с максимумом при 800°С) в области границ аустенитных зерен, что усугубляется различиями в коэффициентах термического расширения матрицы и образующихся фаз ~ в 1,7 раза, а также образованием при облучении гелиевой пористости на межфазных границах и границах зерен.

При повышении температуры наблюдается отсутствие выделений α -Cr и зон прерывистого распада, что обеспечивает восстановление свойств.

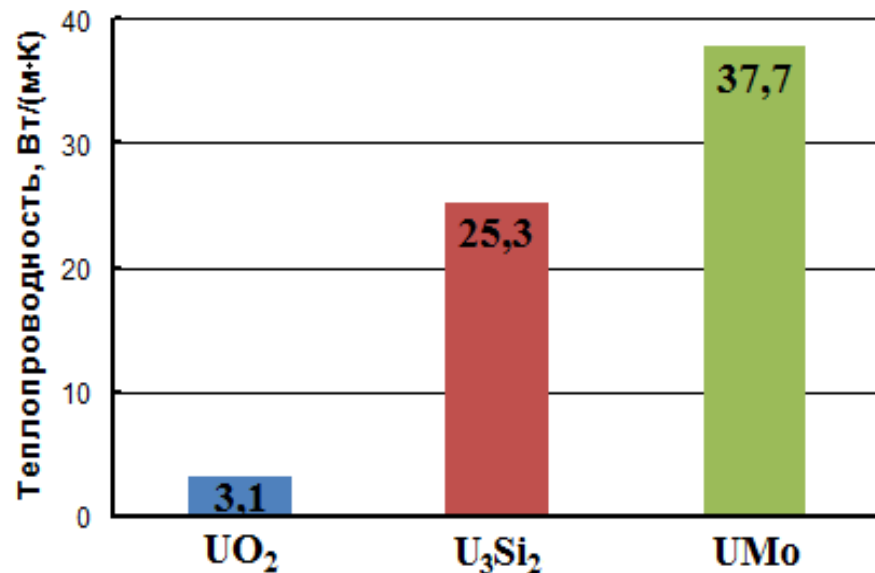
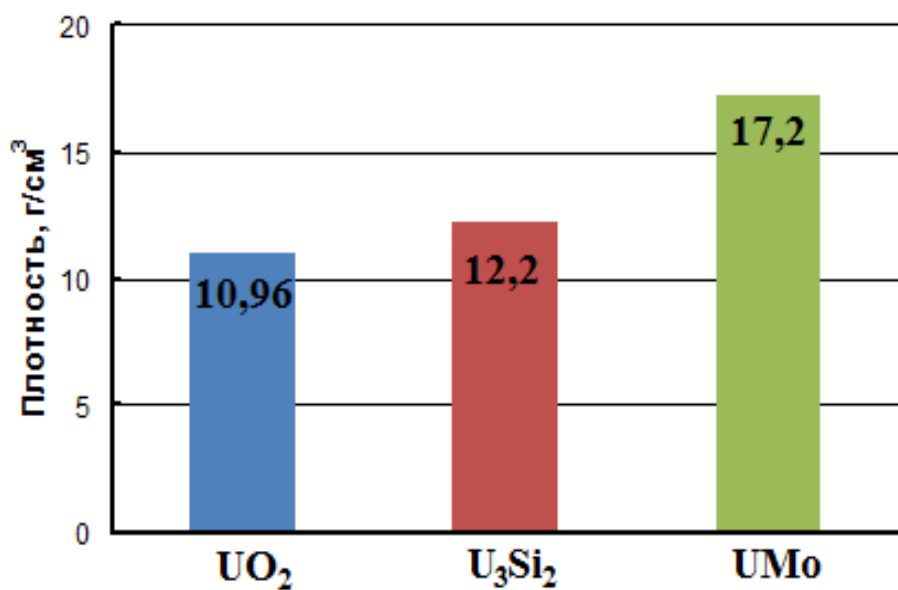
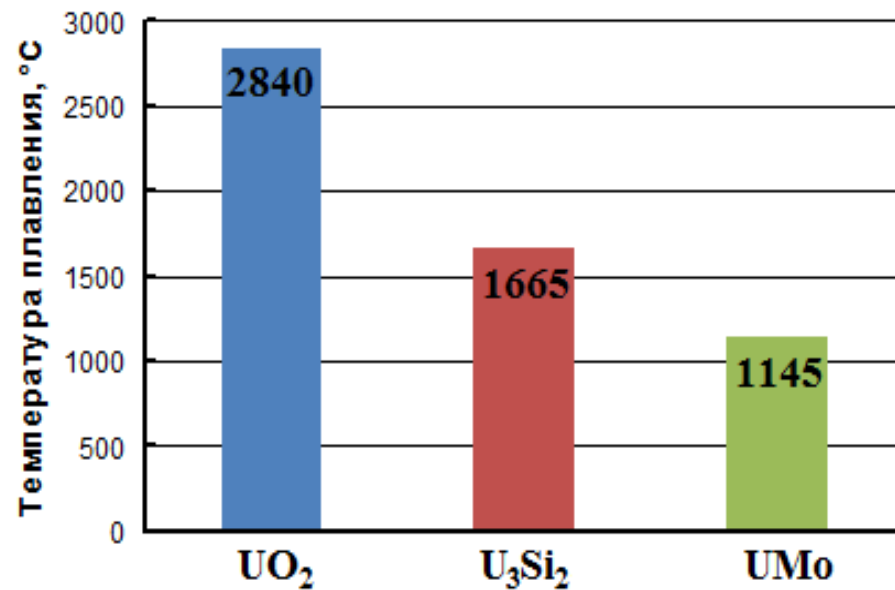
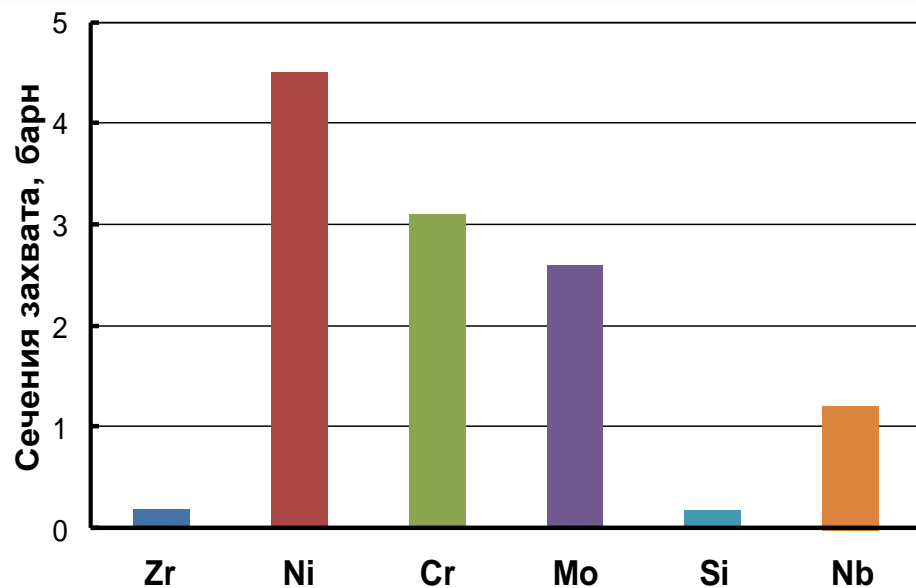
Снижение температуры до $T=20^\circ\text{C}$ после нагрева до 800°С также приводит к восстановлению пластичности к исходному уровню.

Испытания в условиях, имитирующих проектную аварию, продемонстрировали уровень пластичности ~2,6 %, что позволяет рассматривать этот сплав в качестве оболочки толерантного ТВЭЛ.

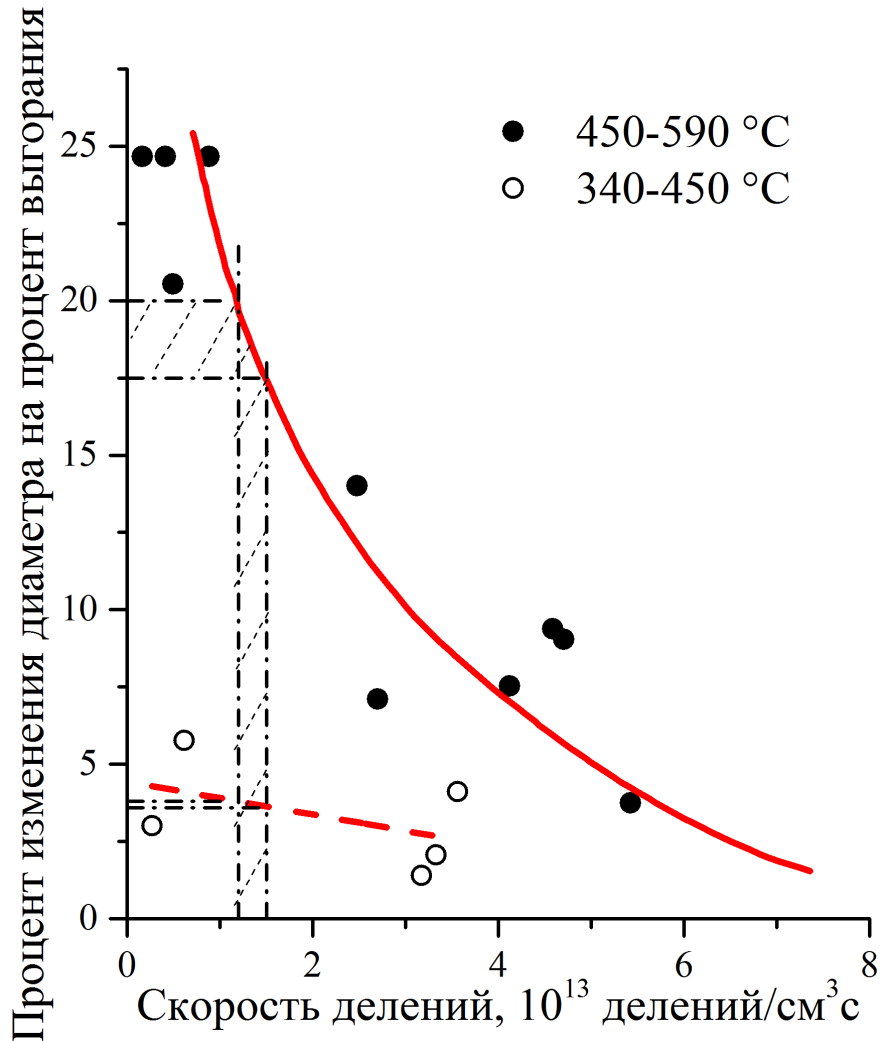


ТОЛЕРАНТНОЕ ТОПЛИВО.

Рассматривавшиеся до настоящего времени варианты



Поведение U-10%Mo под облучением



Распухание сплава U-10 мас.% Mo от выгорания и температуры

Вариант топлива (U-10 % Mo) по сравнению с U-9% Mo отличается (в соответствии с диаграммой состояния) большей стабильностью γ -фазы урана, что может способствовать снижению эффектов радиационного формоизменения топлива за счет снижения вероятности образования α -фазы урана.

Распухание топлива U-10%Mo

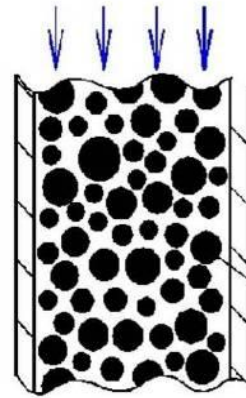
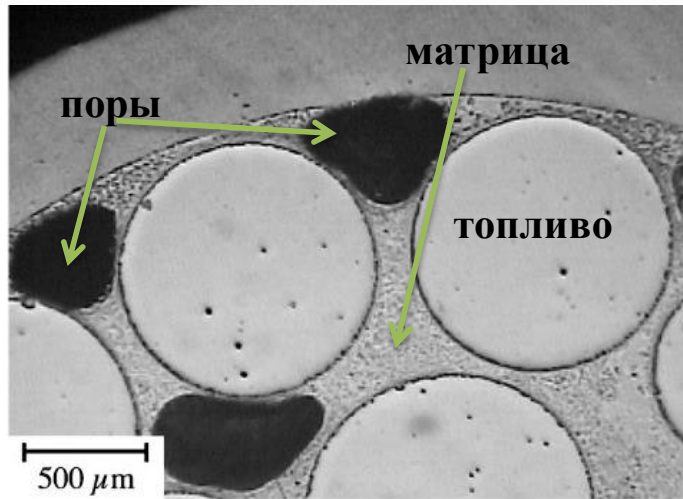
Температура	Распухание в % изменения диаметра	
	Выгорание 40МВтсут/кгU	Выгорание 60МВтсут/кгU
340-450	17	26
460-590	83	126

Изготовление твэлов заливного типа с металлургическим (диффузионным) контактом между оболочкой и топливом для данного топлива неприемлемо из-за высокого распухания топлива в процессе эксплуатации, а также из-за отсутствия практической возможности создания заданного уровня пористости в исходном состоянии для аккомодации высокого распухания топлива под облучением.

Служебные характеристики различных видов топлива

Материал	Т плавл ения, °С	Теплопрово дность при 500°С, Вт/мК	Урано- емкость, г/см ³	$\Sigma U/\Sigma об$ Относит. макроскоп сечение захвата на U	Распухание $\Delta V/V$, % 40÷60 МВтсут/кгU	σ_b , МПа	δ , %	КТР, 10 ⁻⁶ град ⁻¹ (100-800)°С
UO ₂	2865	2÷4	9.6	1,00	6÷9 (700-1200)°С	-	-	
U-10Mo	1240	23	15.4	0,98	51÷78 (340-450)°С	700-950 (на сжатие)	2÷5	12-19
U-60Zr	1720	18,4	3.4	0,98	8÷14 (300-400)°С	-	-	
U-N	2805	20	13,5	1,00	~6÷9 (550-900)°С	1950	-	8,61
U ₃ Si ₂	1665	16	11,3	0,99	4-6,5	160-180 (на сжатие)	-	15,5 (20-200)°С
42ХНМ оболочка	1345	23	-	-	< 0.05	800 (300°С) 800(500 °С)	40 (300°С) 35(500 °С)	15,0-18,4

Композит: топливо + матрица + поры



Гранулы топлива и матрицы засыпают в оболочку твэла из сплава 42ХНМ ($T_{пл}$ оболочки = 1345°C), после чего при температуре, превышающей температуру плавления сплава матрицы, образуют монолит с заданной степенью пористости.

Размер пор и их объемная доля контролируется с помощью выбора размера гранул. Регулируемая при изготовлении пористость в композитном топливе сможет аккомодировать распухание топлива в процессе эксплуатации.

Примерный состав композита: топливо – 60 - 80%; Матрица – 10-20%; Поры – 5-20%

Топливная композиция должна обладать следующими характеристиками:

- $T_{пл}$ матрицы ниже, чем $T_{пл}$ оболочки
- Теплопроводность должна обеспечить стабильность активной зоны реактора
- Ураноемкость чем выше, тем лучше
- Низкое паразитное сечение захвата нейтронов
- Уровень распухания не выше, чем способна аккомодировать топливная композиция с заранее заданной пористостью
- σ_b на сжатие для матрицы меньше, чем для топлива
- Близкие значения КТР композиции к КТР оболочки

Потенциальные преимущества совместного использования 42ХНМ в качестве тонкостенной оболочки ТВЭЛ без зазора и композитного топлива

1. В штатных условиях эксплуатации:

- ✓ Отсутствие негативных эффектов коррозионного взаимодействия оболочки с водным теплоносителем, в том числе при возможных условиях нарушения водно-химического режима и/или при подкипании теплоносителя за счет высоких коррозионных и прочностных свойств оболочки из сплава 42ХНМ;
- ✓ Заведомо достаточные для сохранения герметичности оболочек ТВЭЛов запасы остаточной пластичности оболочечного материала в условиях облучения при разумном выборе топлива;
- ✓ Существенное снижение максимальных значений температуры топлива до величин менее $\sim 450^{\circ}\text{C}$ за счет хорошей теплопроводности композитного топлива и отсутствия зазора между топливом и оболочкой;
- ✓ Отсутствие выхода в процессе эксплуатации газообразных продуктов деления из топлива под оболочку.

2. В условиях максимальной проектной аварии:

- ✓ Отсутствие паро-водяной реакции оболочки с паровой смесью вплоть до температур ~ 1200°C;
- ✓ Существенное снижение температуры топлива и оболочки твэла за счет более высокой теплопроводности материала топлива и отсутствия зазора между топливом и оболочкой (возможно ниже 600°C);
- ✓ Увеличение времени для принятия решений при возникновении аварийной ситуации по указанным выше причинам;
- ✓ Более высокая вероятность сохранения герметичности твэлов и остаточной пластичности материала оболочек после проектной аварии.

3. В условиях «сухого» хранения отработавших ТВС:

- ✓ Существенно более надежное обеспечение герметичности твэлов из-за высоких прочностных характеристик оболочечного материала, высокой остаточной пластичности и коррозионной стойкости, а также отсутствия склонности к гидридообразованию и выхода газообразных продуктов деления под оболочку;
- ✓ Отсутствие проявления ползучести в процессе «сухого» хранения из-за отсутствия выхода газообразных продуктов деления под оболочку.