

УДК 621.039.524:691.714.018.8

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ОБЛУЧЕННЫХ ДИСПЕРСИОННЫХ ТВЭЛОВ С ОБОЛОЧКОЙ ИЗ СПЛАВА 42ХНМ ПРИ ПОВЫШЕННОЙ ТЕМПЕРАТУРЕ

*Кулаков Г.В., Коновалов Ю.В., Ватулин А.В., Косауров А.А. (АО «ВНИИНМ», г. Москва),
Шишин В.Ю., Шельдяков А.А. (АО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград), Романов А.И., Морозов О.А.,
Самойлов О.Б. (АО «ОКБМ Африкантов», г. Нижний Новгород)*

e-mail: yuvkonov@bochvar.ru

Статья посвящена изучению поведения твэлов с оболочкой из хромоникелевого сплава 42ХНМ при повышенной температуре и определению стойкости изделий и материалов в условиях, имитирующих аварийные ситуации. Полученные данные могут использоваться для обоснования работоспособности дисперсионных твэлов при проектировании.

Рассматриваются термические эксперименты с укороченными твэлами, которые предварительно были облучены в реакторе МИР. Твэлы разного конструктивного исполнения были разработаны в АО «ВНИИНМ» для перспективных судовых реакторных установок [1]. Варианты изучаемых твэлов отличаются толщиной оболочки (от 0,15 до 0,3 мм) и материалом топливного сердечника: на основе крупки интерметаллида урана (соединение урана с алюминием, легированное кремнием) и гранул диоксида урана в силуминовой матрице. По конструкции твэлы монолитные самодистанционирующиеся.

Исследование поведения твэлов с оболочкой из хромоникелевого сплава 42ХНМ при повышенной температуре представляет особый интерес, поскольку известна его подверженность высокотемпературному радиационному охрупчиванию. В настоящем исследовании предполагалось изучить влияние варьируемых факторов (тип топлива, толщина оболочки, содержание продуктов деления) на поведение облученных твэлов при высокой температуре.

Эксперименты для изучения поведения необлученных твэлов и после предварительного облучения при повышенной температуре проводились и ранее. Однако имевшееся тогда оборудование не позволяло установить точное время начала выдержки до разгерметизации — устанавливался только факт разгерметизации твэла и объем вышедших газообразных продуктов деления.

Основное внимание в настоящем исследовании было уделено определению температур-

ных и временных пределов работоспособности дисперсионных твэлов с оболочкой из сплава 42ХНМ.

Основные характеристики хромоникелевого сплава 42ХНМ. Хромоникелевый сплав 42ХНМ, разработанный АО «ВНИИНМ», содержит 42% по массе хрома, 1,5% по массе молибдена, остальное никель, широко применяется в качестве конструкционного материала элементов активной зоны атомных ледоколов, а также в качестве оболочечного материала поглощающих стержней системы управления и защиты ВВЭР [2—5]. Перспективно его использование и в качестве оболочечного материала твэлов реакторов атомных станций малой мощности и ВВЭР [6, 7].

Сплав 42ХНМ обладает высокой коррозионной стойкостью. В отличие от стали он не склонен к коррозионному растрескиванию под напряжением, в отличие от циркониевых сплавов в аварийных ситуациях он не подвержен реакциям с водяным паром, сопровождающимся повышенным выделением водорода. Положительным свойством сплава является высокая пластичность в облученном состоянии при рабочей температуре.

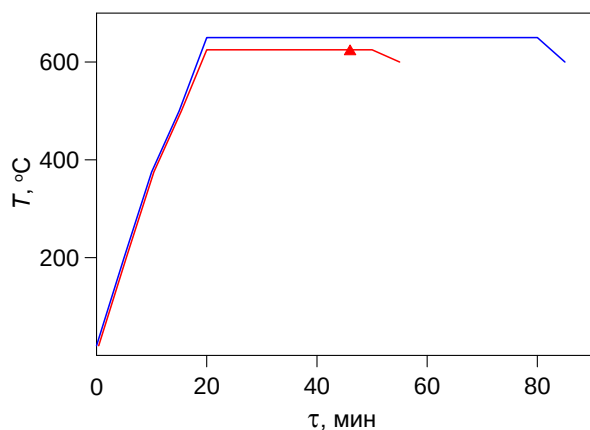
Однако известно, что он подвержен высокотемпературному радиационному охрупчиванию, что проявляется в снижении пластичности оболочек при температуре свыше 600 °С [8].

Условия облучения твэлов и эксперименты. В настоящей работе рассматриваются термические эксперименты, которые проведены в АО «ГНЦ НИИАР» с укороченными твэлами, предварительно облученными в составе двух блоков облучательного устройства реактора МИР [9]. Условия облучения блоков отличались продолжительностью — 1228 и 276 сут работы на мощности, накопленным содержанием продуктов деления — 0,9 и 0,3 г/см³ и флюенсом быстрых нейтронов энергией более 0,1 МэВ в центральной зоне твэлов — $9,5 \cdot 10^{25}$ и

$2,6 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-2}$. Температура наружной поверхности оболочек не превышала 350°C .

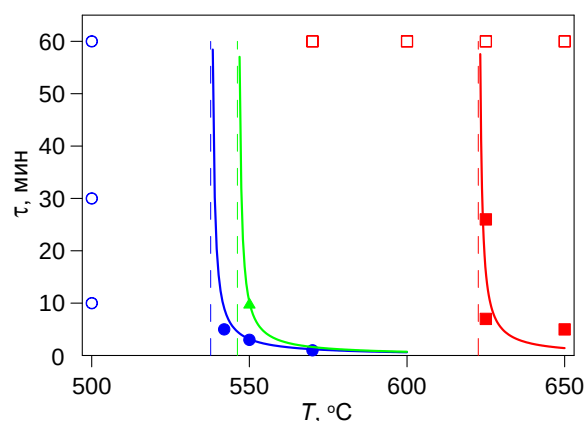
Для экспериментов было разработано специальное оборудование (стенд), позволяющее нагревать облученные твэлы до 700°C . Испытания проводили в среде инертного газа (аргон), скорость нагрева составляла $0,5^\circ\text{C}/\text{с}$. Погрешность измерения температуры 5°C .

В каждом эксперименте испытывали один твэл. Эксперимент представлял собой нагрев облученного твэла до заданной температуры — выдержка в течение заданного времени — охлаждение (рис. 1). При разгерметизации твэла выдержка прекращается, фиксируются время с начала выдержки и температура разгерметизации, твэл охлаждается вместе со стендом. Свидетельством о разгерметизации твэла при нагреве являлась регистрация радиоактивного благородного газа ^{85}Kr , вышедшего через дефект в оболочке в объем радиационно-защитной камеры и спецвентиляцию, специальным блоком детектирования в составе автоматизированной системы радиационного контроля. Система позволяет также определить суммарную активность газа, вышедшего из разгерметизировавшегося твэла.



Р и с. 1. Изменение температуры в ходе термических экспериментов: разгерметизация после 46-минутной выдержки при 625°C (—), начало разгерметизации (▲), сохранение герметичности после 60-минутной выдержки при 650°C (—)

Основные результаты термического анализа — достигнутая температура, время выдержки, в том числе время до разгерметизации показаны на рис. 2. Данные термических испытаний твэлов двух блоков с оболочкой из сплава 42ХНМ могут быть консервативно описаны единой эмпирической зависимостью



Р и с. 2. Экспериментальная зависимость времени до разгерметизации от температуры испытания при содержании продуктов деления, $\text{г}/\text{см}^3$: 0,3 (□, ■ — герметичный и негерметичный твэл соответственно), 0,84 (▲ — негерметичный твэл), 0,9 (○, ● — герметичный и негерметичный твэл соответственно) и расчетная по уравнению (1) при содержании продуктов деления 0,3 (—), 0,84 (—), 0,9 $\text{г}/\text{см}^3$ (—) и максимальной температуре 623, 546 и 538°C соответственно (для герметичных твэлов показано время выдержки)

$$\tau(T, B) = \begin{cases} \text{без разгерметизации,} & T \leq T_{\text{макс}}(B); \\ 38,56 / [T - T_{\text{макс}}(B)], & T > T_{\text{макс}}(B), \end{cases} \quad (1)$$

где $\tau(T, B)$ — время до разгерметизации твэла, предварительно облученного до содержания продуктов деления $B, \text{г}/\text{см}^3$, при температуре испытания T , мин; $T_{\text{макс}}(B) = 665 - 141,4B$ — максимальная температура, ниже которой разгерметизация не происходит, $^\circ\text{C}$.

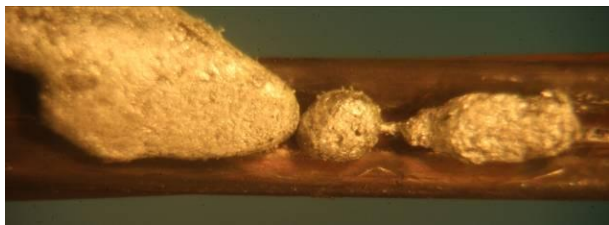
Сопоставление расчетных по зависимости (1) и экспериментальных данных, показанное на рис. 2, удовлетворительное. Зависимость (1) позволяет прогнозировать разгерметизацию твэлов, облученных до накопления продуктов деления B , и время до разгерметизации.

Отмечается зависимость поведения твэлов от количества предварительно накопленных продуктов деления. Предположительно при содержании 0,3 и $0,9 \text{ г}/\text{см}^3$ действуют разные механизмы разгерметизации твэлов.

При нагреве твэла, предварительно облученного до накопления продуктов деления $0,9 \text{ г}/\text{см}^3$, дополнительно увеличивается объем сердечника с образованием пор, значительно изменяется размер твэла и деформируется оболочка, что в связи с ее пониженной пластичностью приводит к разгерметизации при температуре, начиная примерно с 550°C . Площадь поперечного сечения твэлов после облучения

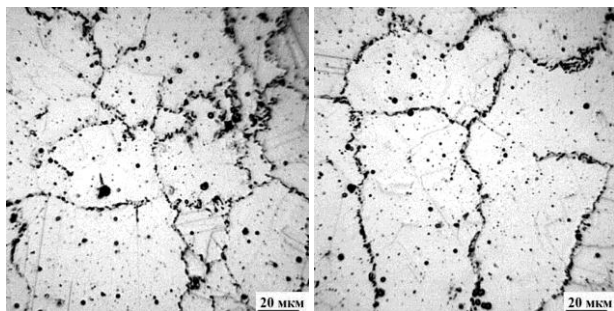
увеличилась примерно на 10—15%, в результате нагрева еще на 5%. Таким образом, разрушению предшествовала значительная кратковременная пластическая деформация оболочки не менее 4—5%.

При нагреве предварительно облученного до содержания продуктов деления $0,3 \text{ г/см}^3$ твэла накопленных газообразных продуктов деления недостаточно, чтобы разрушить оболочку или матрица в состоянии их удерживать, газообразное распухание также невелико. Только нагрев до температуры выше 625°C , которая значительно превышает температуру плавления матричного материала, представляющего собой алюминиевый сплав, приводит к его расплавлению и разгерметизации (рис. 3).



Р и с. 3. Внешний вид твэла после выдержки при 625°C в течение 7 мин и разгерметизации

Следует отметить, что дисперсионные твэлы с топливной композицией диоксид урана + силумин, предварительно облученные до накопления продуктов деления $0,3 \text{ г/см}^3$, показали более высокую стойкость к термическому воздействию. Твэлы с этой топливной композицией сохранили герметичность после выдержки 1 ч при 600, 625 и 650°C , разгерметизировался лишь один твэл после выдержки 59 мин при 650°C .



Р и с. 4. Микроструктура оболочки облученного твэла без нагрева (а) после электрохимического травления и после выдержки при 600°C в течение 60 мин (б)

Показанная на рис. 4 микроструктура оболочки облученного твэла в результате выдержки при 600°C в течение 1 ч не изменилась.

Закключение. Получена зависимость времени до разгерметизации от содержания продуктов деления и температуры испытания для дисперсионных твэлов с оболочкой из хромоникелевого сплава 42ХНМ толщиной 0,15—0,3 мм, предварительно облученных в реакторе МИР до 0,3 и $0,9 \text{ г/см}^3$ и подвергнутых нагреву до 450 — 650°C .

Твэлы с оболочкой из сплава 42ХНМ могут разгерметизироваться при температуре более 625°C , превышающей температуру плавления сердечника из-за ее взаимодействия с расплавленной топливной композицией, или в связи с выходом под оболочку газообразных продуктов деления. В последнем случае деформация оболочки, предшествующая разгерметизации, составляет не менее 4—5%.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кулаков Г.В., Ватулин А.В., Ершов С.А. и др. Опыт и перспективы разработки материалов и твэлов для активных зон транспортных реакторов и атомных станций малой мощности. — Атомная энергия, 2015, т. 119, вып. 5, с. 243—249.
2. Солонин М.И., Кондратьев В.П., Вотинов С.Н. и др. Сплав ХНМ-1 как перспективный материал для элементов конструкций ядерных и термоядерных реакторов с водным теплоносителем. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 1995, вып. 1 (52), с. 13—20.
3. Solonin M.I., Kondrat'ev V.P., Rechitsky V.N. et al. ХНМ-1 alloy as a promising structural material for water-cooled fusion reactor components. — J Nucl. Mater, 1996, v. 233—237, p. 586—591.
4. Solonin M.I., Kondrat'ev V.P., Rechitsky V.N. et al. Cr—Ni alloys for fusion reactors. — Ibid., 1998, v. 258—263, p. 1762—1766.
5. Ватулин А.В., Кондратьев В.П., Речицкий В.Н. и др. Исследование коррозионной и радиационной стойкости никель-хромового сплава «Бочвалой». — Металловедение и термическая обработка металлов, 2004, № 11, с. 19—24.
6. Кулаков Г.В., Ершов С.А., Коновалов Ю.В. и др. Основные свойства сплава 42ХНМ и перспективы его внедрения в качестве конструкционного материала твэлов ВВЭР. Тезисы научно-технич. конф. «Ядерное топливо нового поколения для АЭС». Сочи, АО «ТВЭЛ», 9—10 октября 2018 г., с. 37.
7. Кулаков Г.В., Ершов С.А., Коновалов Ю.В. и др. Основные свойства сплава 42ХНМ и перспективы его внедрения в качестве конструкционного материала элементов ВВЭР. Тезисы докл. XI конф. по реакторно-

му материаловедению. Димитровград, 27—31 мая 2019 г., с. 37—39.

8. Гринчук П.П., Голованов В.Н., Солонин М.И. и др. Радиационная и коррозионная стойкость сплава ХНМ-1. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2005, вып. 1 (64), с. 273—280.

9. Шишин В.Ю., Шельдяков А.А., Власов Ю.А. и др. Результаты термических испытаний опытных твэлов с оболочками из хромоникелевого сплава. — В сб.: Труды АО «ГНЦ НИИАР». Димитровград, 2019, вып. 3, с. 48—53.

Поступила в Редакцию 24.07.20

УДК 621.039.524:691.714.018.8

СПЛАВ 42ХНМ И КАРБИД КРЕМНИЯ КАК МАТЕРИАЛ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ, УСТОЙЧИВЫХ К АВАРИЯМ

Карпюк Л.А., Новиков В.В., Кулаков Г.В., Коновалов Ю.В., Леонтьева-Смирнова М.В., Голубничий А.А., Иванов С.И., Макаров Ф.В., Глебов А.В. (АО «ВНИИНМ», г. Москва)
e-mail: lakarpyuk@bochvar.ru

В настоящей статье приведены результаты исследования способов получения и оптимизации свойств таких материалов, как хромоникелевый сплав 42ХНМ и карбид кремния, предназначенных для изготовления оболочек твэлов, устойчивых к аварии.

Сплав 42ХНМ. Сплав содержит 42% по массе хрома, 1,5% по массе молибдена, остальное никель, обладает высокой коррозионной и радиационной стойкостью при облучении. В нашей стране накоплен большой опыт его использования в качестве конструкционного материала оболочек твэлов активных зон атомных ледоколов и транспортных реакторов, поглощающих элементов системы управления и защиты ВВЭР [1—3]. За время эксплуатации случаев разгерметизации оболочки не зафиксировано. Промышленный выпуск оболочек налажен в ПАО «МСЗ».

К преимуществам сплава 42ХНМ можно отнести отсутствие пароводяной реакции в аварийных условиях, радиационную стойкость, высокую коррозионную стойкость в среде теплоносителя, высокие прочностные и пластические характеристики, хорошую свариваемость, отсутствие склонности к межкристаллитному коррозионному растрескиванию при эксплуатации, а также необходимости создания нового промышленного производства.

Сплав имеет относительно невысокую в сравнении с циркониевыми температуру плавления 1350 °С, образующаяся при значительном повышении температуры оксидная пленка повышает ее незначительно. Однако наиболее

важным фактором при выборе оболочки топлива, устойчивого к аварии, является коррозионная стойкость до 1200 °С. Сплав 42ХНМ по сравнению с аустенитной сталью достиг во много раз большего времени выдержки в широком диапазоне коррозионно-активных сред окислительного и восстановительного характера [2]. За счет высокого содержания хрома он имеет способность к самопроизвольной пассивации.

В исследованиях АО «ВНИИНМ» образцы сплава 42ХНМ размером 9,1×8,24 и 9,5×8,64 мм были подвергнуты коррозионным испытаниям при 1200 °С в течение 500 с. Удельный привес образца в среднем составил 0,5 мг/см², что значительно ниже удельного привеса образцов сплава Э-110 в исходном состоянии (12 мг/см²) и образцов сплава Э-110 с хромовым покрытием, нанесенным по технологии АО «ВНИИНМ» (6,4 мг/см²) в аналогичных условиях. В результате исследований был сделан вывод о том, что сплав 42ХНМ почти не окисляется при 1200 °С в течение 500 с.

Межкристаллитное коррозионное растрескивание сплава 42ХНМ в сравнении с аустенитной сталью определяли по разработанной в АО «ВНИИНМ» ампульной методике (рис. 1) [4—6]. Установлено, что аустенитная сталь разных марок по времени до разрушения уступает сплаву 42ХНМ более чем в 100 раз. Следует отметить, что при времени выдержки 100 000 ч разрушение ампул из сплава 42ХНМ не зафиксировано. Такая сопротивляемость воздействию агрессивных сред исключает возможность взаимодействия оболочки твэла с теплоносителем