

- 165 dpa. — J. Nucl. Mater., 1996, v. 233—236, p. 289—292.
19. **Toloczko M., Garner F., Standring J. e.a.** Flux and composition dependence of irradiation creep of austenitic alloys irradiated in PFR at $-420\text{ }^{\circ}\text{C}$. — Ibid., 1998, v. 258—263, p. 1606—1612.
 20. **Grossbeck M., Mansur L.** Low-temperature irradiation creep of fusion reactor structural materials. — Ibid., 1991, v. 179—181, p. 130—134.
 21. **Grossbeck M., Gibson L., Jitsukawa S. e.a.** Irradiation creep at temperatures of $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ and below for application to near-term fusion devices. — In: Effects of Radiation on Materials. 18th Intern. Symp. ASTM STR 1325, 1999, p. 725—741.
 22. **Zabudko L.M., Kravchenko I.N., Korostin O.S., Ogorodov A.N.** Analysis of the BN-600 reactor subassemblies operating experience. — In: Proc. of Intern. Conf. UK, 1990, p. 289—292.
 23. **Cheon J., Lee C., Lee B. e.a.** Sodium fast reactor evaluation. Core materials. — J. Nucl. Mater., 2009, v. 392, p. 324—330.
 24. **Gelles D.S.** Effects of irradiation on ferritic alloys and implications for fusion reactor applications. — Ibid., 1987, v. 149, p. 192—199.
 25. **Kohyama A., Kohno Y., Asakura K. e.a.** Irradiation creep of low-activation ferritic steels in FFTF/MOTA. — Ibid., 1994, v. 212—215, p. 751—754.
 26. **Seran J., Levy V., Dubuisson P. e.a.** Behaviour under neutron irradiation of the 15—15 Ti and EM10 steels used as standard materials of the Phenix fuel subassembly. — In: Effects of Radiation on Materials. 15th Intern. Symp. ASTM STP 1125, 1992, p. 1209—1233.
 27. **Klueh R., Harries D.** High-Chromium Ferritic and Martensitic Steels for Nuclear Applications. USA: ASTM, 2001.
 28. **Little E., Stow D.** Void swelling in iron and ferritic steels. II. An experimental survey. — J. Nucl. Mater., 1973, v. 87, p. 25—39.
 29. **Поролло С.И., Шулепин С.В., Иванов А.А. и др.** Распухание и радиационная ползучесть аустенитной коррозионно-стойкой стали, облученной нейтронами в широком диапазоне дозы и температуры. — Атомная энергия, 2011, т. 110, вып. 4, с. 207—214.
 30. **Бозин С.Н., Родченков Б.С., Каштанов А.Д. и др.** Исследования конструкционных материалов для реактора со свинцовым теплоносителем. — Там же, 2012, т. 113, вып. 5, с. 257—263.

Поступила в Редакцию 2.07.15

УДК 621.039.548.533

ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ СТАЛИ ЭК-164 С ДИОКСИДОМ УРАНА ПРИ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОМ ОБЛУЧЕНИИ

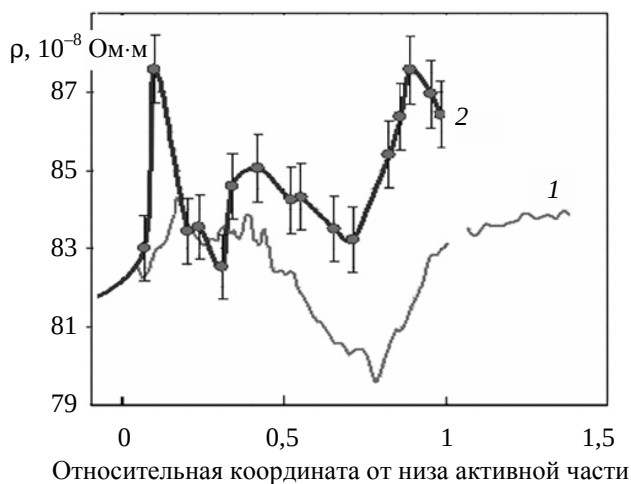
Кинев Е.А., Пастухов В.И., Шихалев В.С. (АО «ИРМ», г. Заречный)

Перспективы эксплуатации энергетических быстрых реакторов связаны с использованием жаропрочной радиационно-стойкой стали, в качестве которой исследуется сталь марки ЭК-164 в холоднодеформированном состоянии [1]. Гарантия длительной работоспособности твэлов невозможна без контроля коррозионного взаимодействия этой стали с сердечником, материалом которого является диоксид урана обогащением 17—26%.

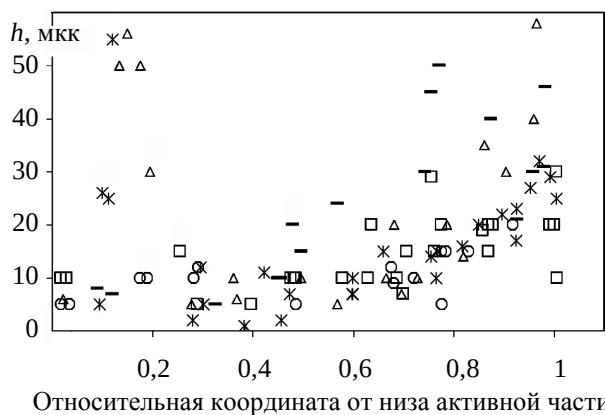
Объектом исследования являлись твэлы экспериментальных ТВС максимальным выгоранием в центре активной части 9, 10, 10, 12 и 13% тяж. ат. и повреждающей дозой 75—77, 66—73, 81—83, 87—94 и 82—94 смещ./ат. соответственно. Температура оболочки в нижней области активной части составляла $410\text{ }^{\circ}\text{C}$, в верхней — $560\text{—}640\text{ }^{\circ}\text{C}$. Оболочки с максимальной повреждающей дозой 66—77 смещ./ат. изготовлены по штатной технологии, остальные — по усовершенствованной [1].

Электропотенциальное сканирование твэлов максимальным выгоранием 10% тяж. ат. и повреждающей дозой более 80 смещ./ат. до и после разделки на образцы позволило выявить две вероятные зоны интенсивной коррозии внутренней поверхности оболочки. Типичная резистогамма твэла с участками коррозии на относительных координатах 0,1—0,25 и 0,8—1 и пиком радиационного распухания (координаты 0,25—0,45) показана на рис. 1. На основании аналогичных данных выполнены структурные исследования коррозионного состояния оболочки со стороны топлива в нижней и верхней области активной части твэла в сравнении с центром.

На рис. 2 видно, что центральная энергонапряженная часть оболочек в координатах 0,3—0,5, традиционно подверженная радиационному распуханию и связанному с ним разупрочнению, подвергается умеренной (не глубже 20 мкм) коррозии со стороны топлива [2]. Интенсив-



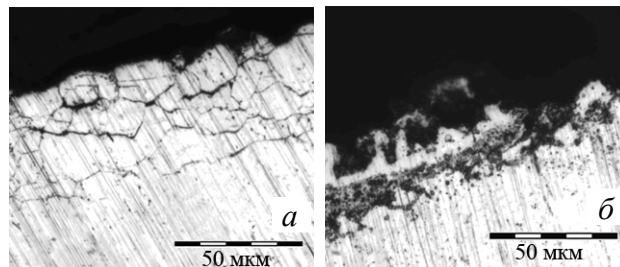
Р и с. 1. Изменение удельного электросопротивления по длине твэла (1) максимальным выгоранием 9,7% тяж. ат. и повреждающей дозой 82,5 смещ./ат. и его образцов (2) после разделки



Р и с. 2. Глубина внутритвэльной коррозии оболочки твэла максимальным выгоранием 9 (○), 10 (□), 10 (△), 12 (*), 13 тяж. ат. (—) и повреждающей дозой 75—77, 66—76, 81—83, 87—94, 82—94 смещ./ат. соответственно

ность коррозии в этой области слабо зависит от степени выгорания топлива и повреждающей дозы материала оболочки, представляя собой, как правило, единичные дефекты либо повышенную травимость границ зерен. Физико-химическое взаимодействие топливо—оболочка в центре активной части минимально ввиду стабильности остаточного зазора на уровне исходных 0,075 мм и отсутствия скоплений осколочного цезия, мигрирующего на периферию активной зоны.

Особого внимания заслуживают участки внутритвэльной коррозии оболочек в интервале координат активной части 0,1—0,2 и 0,8—1, где их живое сечение утоняется на 7—15%. Установлено, что в области нижнего очага коррозии при температуре около 450 °С наблюдается



Р и с. 3. Внутренняя межкристаллитная коррозия оболочки в нижней (а) и верхней области (б) активной части твэла

межкристаллитная коррозия стали (рис. 3, а). При температуре эксплуатации выше 580 °С внутри оболочки образуется многослойный субстрат из коррозионно-активных продуктов деления и топлива, продуктов сплошной коррозии металла и фронта межкристаллитной коррозии (рис. 3, б).

При температуре менее 450 °С и низком радиационном распухании внутритвэльная межкристаллитная коррозия оболочки из стали ЭК-164 на глубину до 55 мкм в нижней области активной части твэлов выявлена впервые. В общем массиве данных прослеживается прямая, возможно, пороговая зависимость глубины низкотемпературной коррозии от условий эксплуатации. Значительное усиление коррозии регистрируется в твэлах максимальным выгоранием около 10% тяж. ат. и повреждающей дозой выше 81 смещ./ат. (см. рис. 2). При более низком облучении глубина коррозии не превышает 10 мкм. В целом характер развития anomalously глубокой коррозии стали ЭК-164 внизу активной части подобен обнаруженному ранее в оболочках из стойкой к радиационному распуханию стали ЭП-450 [3]. Причиной коррозии в обоих случаях является низкое формоизменение оболочек на фоне распухающего сердечника, провоцирующего усиление термомеханического взаимодействия топливо—оболочка.

В табл. 1 приведены параметры облучения, микротвердость, распухание и ширина остаточного зазора, в условиях которых протекает низкотемпературная межкристаллитная коррозия оболочек твэлов, показанная на рис. 2. При температуре 430—470 °С материал оболочки по данным микротвердости находится в состоянии радиационного упрочнения, его распухание не превышает 2—3% независимо от максимально достигнутых по ТВС параметров, наблюдается тенденция сужения остаточного зазора ниже

Таблица 1. Зависимость глубины коррозии оболочек от условий облучения

Координата активной части	Доза, смещ./ат.	Выгорание, тяж. ат.	$T_{\text{обл.}}, ^\circ\text{C}$	Ширина зазора, мкм	Глубина коррозии, мкм	HV, кгс/мм ²	$T_{\text{исп}} = T_{\text{обл}}$ (кольцевые образцы)		Распухание, %
							$\sigma_{\text{в}}, \text{МПа}$	$\delta_{\text{общ}}, \%$	
0,1—0,25	63	7,8	450	0,065—0,075	10	350—400	450—800	2—4	3,2
	63	9,3	470	0,045—0,055	15	370	820	0	1,8—2,5
	65	8,3	450	0,04—0,1	30—55	340—350	320—550	0	1,5—2,1
	63	8,8	430	0,05—0,1	25—55	400	740—820	0—2	1,9—2,1
	60	9,2	430	0,075	10	400	500—850	0—1	1,2—1,6
0,8—1	58	7	580	0,045—0,12	15—20	250—300	430—730	1—3	0,4—0,9
	58	8,3	590	0,05—0,18	20	250—280	360	0,5	0,3
	63	7,3	570—610	0,07—0,09	20—58	200—250	160—400	0—2	0,4—1
	71	9,3	560—600	0,08—0,2	20—32	280	270—570	0—1	0,3—0,7
	73	10,3	590	0,075—0,2	30—46	300—320	230—370	0	0,3—1,1

исходного состояния, массовое скопление агрессивных продуктов деления в зазоре отсутствует. На этом фоне даже в условиях сужения живого сечения оболочек под действием коррозии консервативные кратковременные механические свойства стали ЭК-164 в нижней области активной части твэлов остаются на высоком уровне.

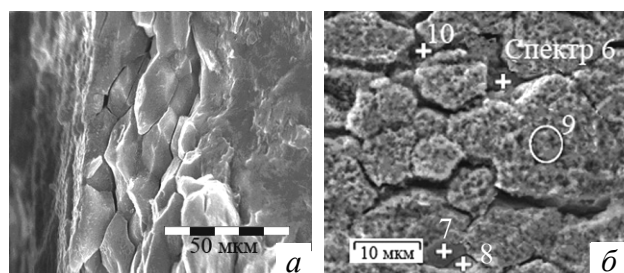
Поверхность разрушения образцов при механических испытаниях оболочек, пораженных внутритвэльной низкотемпературной коррозией, характеризуется наличием внутренней полосы межкристаллитного фронта с шириной, равной глубине межкристаллитной коррозии, и транскристаллитным доломом матрицы (рис. 4, а). Типичный вид и химический состав внутренней окисленной поверхности оболочки с низкой концентрацией молибдена, следами цезия и бария приведены на рис. 4, б и в табл. 2.

При температуре облучения выше 560 °C характер взаимодействия стали ЭК-164 и топливного сердечника изменяется. Термически активируемый процесс внутритвэльной коррозии

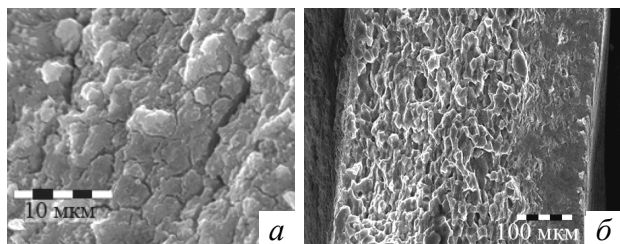
Таблица 2. Химический состав различных участков внутренней поверхности оболочки внизу активной части

Элемент	Спектр (см. рис. 4, б)				
	6	7	8	9	10
O	1	0,8	1,3	12,6	2,5
Si	0,1	0,2	0,1	0,5	0,2
Ti	0,2	0,2	0,1	0,1	0,2
Cr	22,9	17,8	21,3	19,5	19,6
Fe	66,9	61,2	65,9	46	61
Ni	7,9	18,6	10,9	13,9	14,7
Mo	0,2	1,1	0,1	1,7	0,6
Cs	0,3	—	0,1	0,8	0,2
Ba	0,3	—	—	1,1	0,2
U	0,2	0,2	0,2	3,8	0,8

стали развивается по данным микротвердомерии и механических испытаний на фоне распада твердого раствора и высокотемпературного радиационного охрупчивания (см. табл. 1). Распухание стали при высокой температуре облучения минимально, но остаточный зазор сужается в меньшей степени, чем внизу активной части, или отсутствует из-за скоплений летучих продуктов деления, способных образовывать уранатные фазы на поверхности топливных таблеток и оболочки. При наличии коррозионно-активных реагентов (Cs, Te, I) утонение оболочки до 15% протекает по смешанному механизму путем фронтальной и межкристаллитной коррозии (см. рис. 3, б, 5, а). Разрушаются образцы при высокотемпературных механических испытаниях следующим образом: изначально по



Р и с. 4. Поверхность разрушения (а) и внутренняя поверхность (б) образца из зоны низкотемпературной межкристаллитной коррозии оболочки при 400 °C

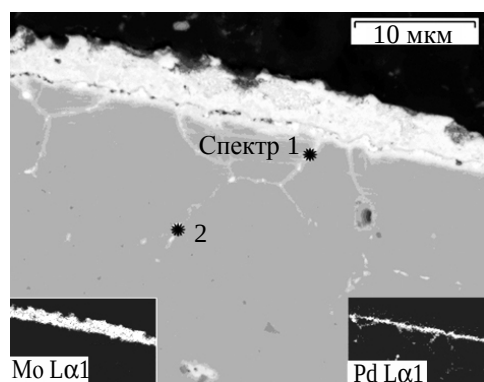


Р и с. 5. Внутренняя (а) и общая поверхность излома (б) образца оболочки из зоны высокотемпературной коррозии при 600 °С

фронту межкристаллитной коррозии, долом разрушения (до 70% сечения) — по разупрочненным границам матричных зерен (рис. 5, б).

Картографический анализ поперечного шлифа оболочки со стороны топлива в области высокой температуры показывает наличие отложений молибдена и палладия (рис. 6, табл. 3). Последний по данным микроанализа способен диффундировать вдоль поврежденных коррозией границ с пониженной концентрацией хрома в глубь металла. Цезий и теллур, по-видимому, смываются с поверхности образцов при технологической дезактивации, миграция по границам отсутствует.

Прямая зависимость глубины высокотемпературной коррозии стали ЭК-164 от выгорания неочевидна. Наличие агрессивных продуктов деления в зоне коррозии является обязательным, но их поступление и реакционная способность зависят от ширины остаточного зазора, наличия геттеров кислорода, например, молибдена, толщины оксидных образований. На основании экспериментальных данных можно полагать, что глубина внутритвэльной коррозии на уровне 60 мкм в достигнутых и планируемых далее



Р и с. 6. Общий вид и картограмма химического состава продуктов взаимодействия в зоне высокотемпературной коррозии

Т а б л и ц а 3. Химический состав различных участков оболочки со стороны внутренней поверхности сверху активной части

Элемент	Спектр (см. рис. 6)	
	1	2
O	—	23,8
Si	0,3	0,2
Ti	0,2	0,1
V	0,1	0,2
Cr	13,9	12,4
Fe	55	44,6
Ni	15,6	13,3
Nb	0,2	—
Mo	2,1	2,7
Pd	12,6	2,7

условиях эксплуатации твэлов может быть максимальной или затухающей (см. рис. 2). Фазовые изменения стали, следствием которых являются признаки высокотемпературного охрупчивания с межкристаллитным разрушением при механических нагрузках в условиях рабочей температуры, могут быть для стали ЭК-164 определяющими.

Таким образом, комплекс материаловедческих исследований внутритвэльной коррозии стали ЭК-164 в контакте с диоксидом урана свидетельствует об удовлетворительной совместимости этих материалов при температуре до 700 °С, максимальной повреждающей дозе 94 смещ./ат. и выгорании 13% тяж. ат. При этом низкотемпературная коррозия стали заслуживает более подробного исследования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Митрофанова Н.М., Целищев А.В., Агеев В.С. и др. Конструкционные материалы для оболочек твэлов и чехлов ТВС реактора БН-600. — Изв. вузов. Ядерная энергетика, 2011, № 1, с. 211—223.
2. Мосин А.М., Евсеев М.В., Портных И.А. и др. Изменение физико-механических свойств оболочек твэлов из сталей ЭК-164 и ЧС68 после эксплуатации в реакторе БН-600 в течение четырех микрокампаний. — Там же, 2011, № 1, с. 224—230.
3. Кинев Е.А., Цыгвинцев В.А. Взаимодействие топлива с оболочкой из ферритно-мартенситной стали в условиях быстрого реактора. — Атомная энергия, 2012, т. 113, вып. 5, с. 298—300.

Поступила в Редакцию 15.06.15