

РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ МАТЕРИАЛОВ И АППАРАТУРЫ

УДК 538.9

ФАКТОРЫ, ВЛИЯЮЩИЕ НА ПЕРЕОРИЕНТАЦИЮ ГИДРИДОВ В НЕОБЛУЧЕННЫХ ОБОЛОЧЕЧНЫХ ТРУБАХ ИЗ СПЛАВА Э110 В УСЛОВИЯХ ДЛИТЕЛЬНОГО СУХОГО ХРАНЕНИЯ ОЯТ

© 2022 г. Р. А. Курский^а, *, А. В. Рожков^а, О. О. Забусов^а,
А. Б. Гайдученко^а, А. С. Брагин^а, Д. А. Мальцев^а, А. А. Шишкин^б

^аНациональный исследовательский центр “Курчатовский Институт”, Москва, 123182 Россия

^бАкционерное общество “ТВЭЛ”, Москва, 115409 Россия

*E-mail: kurskiy_ra@nrcki.ru

Поступила в редакцию 16.12.2020 г.

После доработки 21.06.2021 г.

Принята к публикации 13.07.2021 г.

Одним из факторов, способных привести к разгерметизации оболочек твэлов при длительном хранении отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), является переориентация гидридов. В данной работе проведена оценка степени переориентации гидридов в необлученных газонаполненных образцах, изготовленных из материала оболочек твэлов реактора ВВЭР-1000 (Zr–1% Nb) в условиях, имитирующих условия сухого хранения. Образцы с содержанием водорода 100 и 200 ppm были подвергнуты термомеханическим испытаниям по различным сценариям при окружных напряжениях в оболочке до 100 МПа. Было установлено, что степень переориентации гидридов и связанное с ней снижение пластичности материала оболочек незначительны. Наиболее значимым фактором, влияющим на степень переориентации, является уровень окружных напряжений.

Ключевые слова: реактор ВВЭР-1000, цирконий, гидриды, тепловыделяющие элементы, сухое хранение, отработавшее ядерное топливо

DOI: 10.56304/S2079562922010225

1. ВВЕДЕНИЕ

Основными критериями при обеспечении ядерной безопасности при длительном хранении отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) реакторов ВВЭР-1000 является целостность топливной оболочки и сохранность пластических свойств материала при пониженных температурах [1]. Результатом взаимодействия теплоносителя с оболочками твэлов во время эксплуатации является образование атомарного водорода и его диффузия внутрь оболочки [2]. Снижение температуры ОЯТ вследствие уменьшения остаточного тепловыделения при длительном хранении способствует образованию хрупких гидридных фаз, приводящих к деградации механических свойств материала оболочек и их разгерметизации.

Во время эксплуатации, когда внутреннее давление в твэле компенсируется внешним давлением теплоносителя, гидриды обычно имеют тангенциальную ориентацию, что обусловлено текстурой материала, созданной в процессе термомеханической обработки при изготовлении [2]. Помимо этого, при температуре эксплуатации значительная часть водорода находится в твердом растворе,

что определяет малое количество гидридов в оболочке во время работы реактора.

Однако, при транспортировке или в процессе вакуумной сушки температура оболочки может превысить 400°C [3], что может привести к полному растворению накопленного в процессе эксплуатации водорода. При последующем снижении температуры в процессе сухого хранения может произойти повторное выделение гидридов, но уже в радиальном направлении под действием внутреннего давления. Радиально ориентированные гидриды могут вызвать охрупчивание материала оболочки и служить путем распространения трещины [2].

Так, основываясь на результатах исследований механизмов деградации свойств оболочек за счет переориентации гидридов, регулирующие органы США ввели следующие ограничения на условия транспортировки и хранения: вне зависимости от выгорания топлива температура оболочки не должна превышать 400°C, а окружные напряжения не должны превышать 90 МПа [4]. Между тем, регулирующие органы Японии ограничивают температуру оболочки до 250°C и окружные напряжения до 90 МПа для топлива с выгоранием

Таблица 1. Химический состав труб из сплава Э110 на основе губчатого циркония по данным завода-изготовителя

Материал	Содержание элементов, мас. %								
	Zr	Nb	Fe	O	N	H	Hf	Cu	C
Э110	98.8	0.99	0.05	0.086	<0.002	0.0004	0.004	<0.001	0.005
	Геометрические параметры					Механические свойства			
	Внешний диаметр трубки, мм		Внутренний диаметр трубки, мм			$\sigma_{0.2}$, МПа	σ_m , МПа	δ_m , %*	δ , %**
	9.10		7.93			372	452	4.9	28.8

* Равномерное удлинение.

** Общее удлинение.

до 55 ГВт сут/тU [5]. Также следует учитывать, что максимальная допустимая температура оболочки твэла реактора ВВЭР-440 при стандартных условиях сухого хранения ОЯТ составляет 350°C, а при переходных и аварийных режимах допустимо ее повышение до 450°C в течение 8 ч [6].

Для определения критических параметров, таких как максимальные окружные напряжения и температура оболочки, при транспортировке и хранении твэлов и создания физической модели, адекватно описывающей вклад гидридов в возможную деградацию эксплуатационных характеристик ОЯТ ВВЭР-1000 в условиях сухого хранения, необходимо получить базу экспериментальных данных, включающую результаты микроструктурных исследований, количественно описывающих формирование и трансформацию гидридных фаз в различных условиях, приближенных к условиям хранения ОЯТ. Также необходимо провести механические испытания, которые позволят определить влияние параметров гидридов на механические характеристики оболочек твэлов, изготовленных из сплава Э110.

Для выявления закономерностей формирования структуры гидридов и ее влияния на механические свойства оболочек твэлов в процессе сухого хранения в данной работе были проведены масштабные эксперименты на необлученных образцах с искусственно созданной структурой гидридов, подвергшихся термомеханическим воздействиям в условиях, имитирующих условия длительного хранения.

2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для исследования материалов оболочек твэлов в исходном состоянии использовались образцы длиной 100 мм, вырезанные из бесшовных холоднокатаных труб в рекристаллизованном состоянии, изготовленных из сплава Э110 о.ч. на основе

губчатого циркония. В табл. 1 представлен химический состав исследуемого материала по данным завода-изготовителя (ТУ 001.437-2014), а также размеры изготовленных из него труб твэлов и механические свойства исследуемого материала в исходном состоянии, определенные по испытанию на растяжение кольцевых образцов.

Для создания гидридных фаз, характерных для материалов оболочек твэлов ВВЭР-1000 (в первую очередь, δ -гидридов [7]), производилось наводороживание образцов методом катодной зарядки с последующим диффузионным отжигом в атмосфере аргона (450°C/7 ч) с охлаждением со скоростью 1°C/мин. Содержание водорода в образцах составляло 100 и 200 wppm.

Для создания окружных напряжений на оболочке с целью получения радиально ориентированных гидридов, внутренняя полость образцов заполнялась аргоном под высоким давлением. К газонаполненному образцу через капилляр был подключен манометр.

Термомеханические испытания проводились в муфельной печи в атмосфере инертного газа. Окружные напряжения в образцах при максимальной температуре испытаний (340 или 380°C) варьировались от 0 до 100 МПа. Дополнительные термоциклы по окончании выдержки проводились в температурном интервале 250–380°C, со скоростью нагрева и охлаждения 6°C/ч. Термопики во время испытаний имитировали возможное нарушение теплоотвода в процессе сухого хранения или при транспортировке. Длительность выдержки менялась в диапазоне от 1 ч до 100 сут. Сценарии испытаний представлены на рис. 1.

Для количественной оценки степени ориентации гидридов из каждого образца, прошедшего термомеханические испытания, вырезались три кольцевых образца: один из центра трубки и два на расстояниях ± 25 мм от центра. Для каждого образца определялся коэффициент ориентации

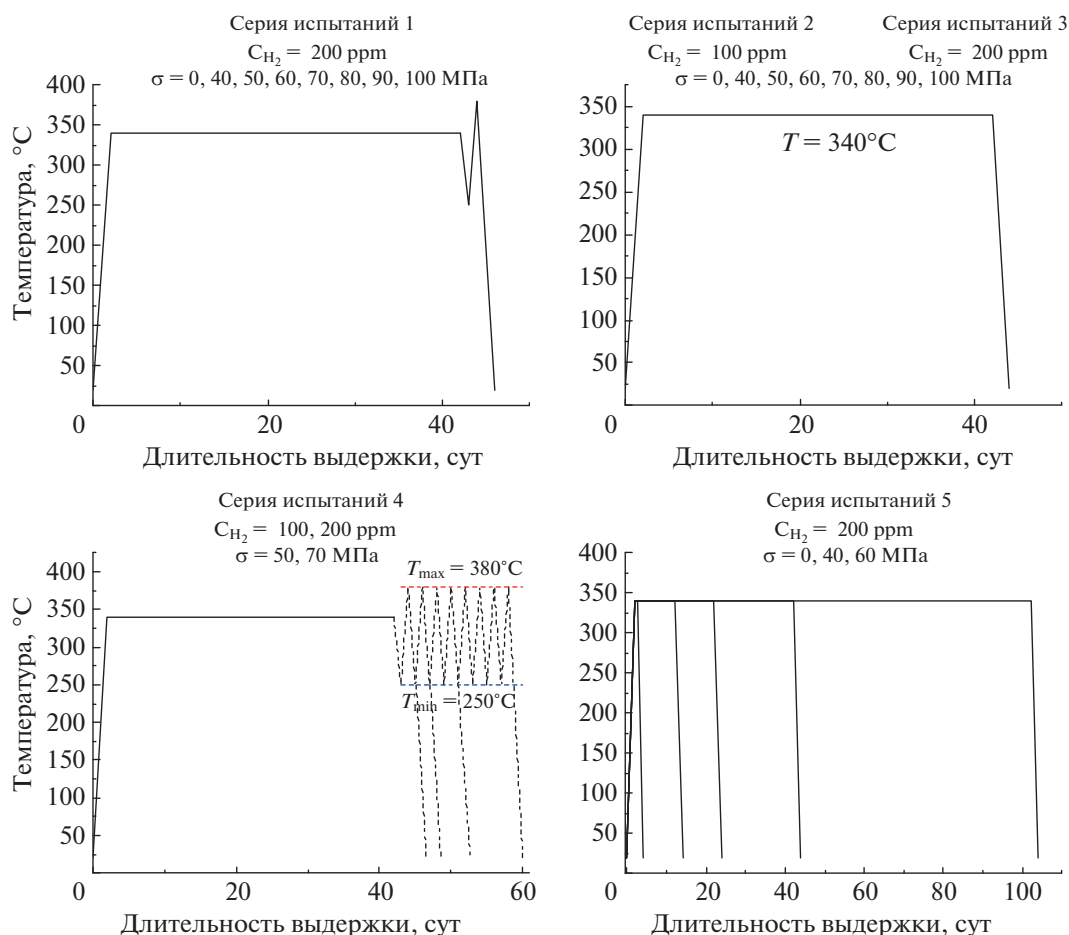


Рис. 1. Режимы термомеханических испытаний для разных серий образцов.

K_L — отношение суммы длин гидридов, ориентированных к радиусу трубы под углом более 45° , к сумме длин всех гидридов [%].

Определение степени деградации механических свойств вследствие переориентации гидридов производилось по результатам испытаний кольцевых образцов шириной 3 мм на одноосное растяжение при комнатной температуре на универсальной испытательной машине ZWICK/ROELL Z030 со скоростью перемещения траверсы 1 мм/мин. Испытания и обработка результатов проводились в соответствии с методикой испытаний кольцевых образцов представленной в работе [9].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Влияние различных факторов на переориентацию гидридов

Растворимость водорода в сплавах циркония определяется составом сплава и его термомеханической обработкой. По данным [10] растворимость водорода в сплаве Zr–1% Nb (состаренном при 500°C в течение 1000 ч) составляет 32, 110, 170 ppm

при 250, 340 и 380°C , соответственно. Поэтому в процессе термомеханических испытаний по выбранному режимам в образцах сплава Э110 с 100 и 200 ppm H должно происходить растворение водорода (полное или частичное) при выдержке при температурах 340 и 380°C и выделение гидридов при охлаждении. Однако возможен механизм переориентации гидридов при термических циклах или длительных выдержках за счет диффузии водорода от тангенциальных гидридов к радиальным без растворения и повторного выделения [11].

Тип выделившихся гидридных фаз и их морфология зависят от состава сплава, термомеханической обработки, содержания водорода, скорости охлаждения, полей напряжений (приложенных и остаточных). Анализ гидридов в необлученных образцах сплава Э110, выполненный в работе [8], показал, что гидриды главным образом представлены δ фазой. Таким образом, тип и морфология гидридов в исследуемых необлученных образцах соответствует аналогичным показателям в облученных оболочках твэлов, в которых также наблюдается преимущественно δ -гидриды [9].

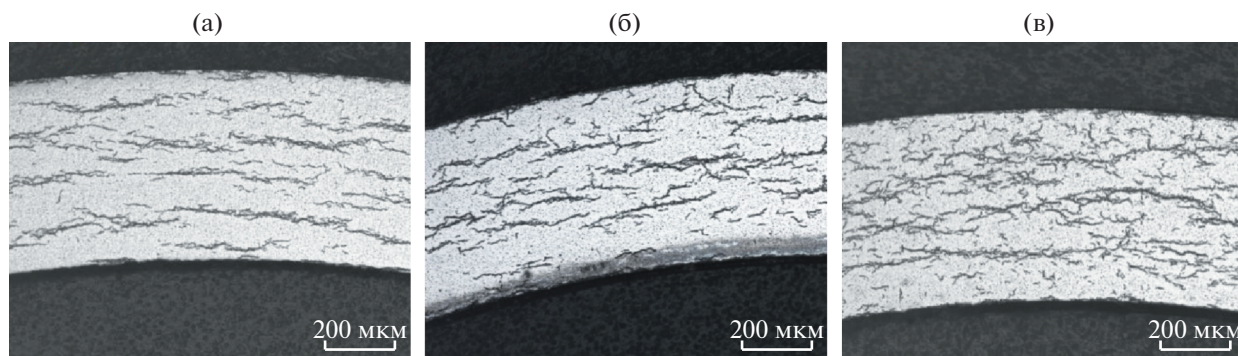


Рис. 2. Микроструктура образцов с содержанием водорода 200 ppm в исходном состоянии (а) и после термомеханических испытаний с окружными напряжениями 80 (б) и 100 (в) МПа.

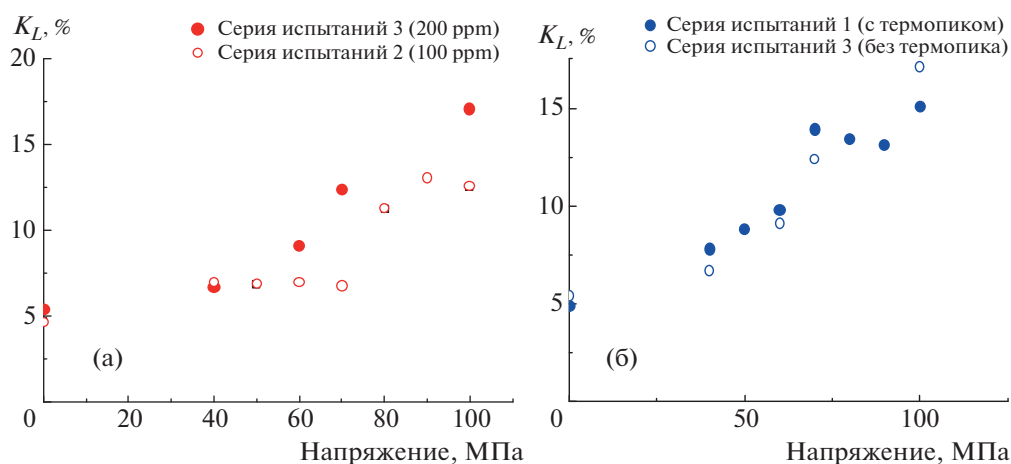


Рис. 3. Зависимость коэффициента ориентации от окружных напряжений в оболочках из сплава Э110 для образцов серии испытаний 1 и 2.

В данной работе были исследованы следующие параметры термомеханических испытаний, влияющие на переориентацию гидридов: уровень окружных напряжений, температура изотермического отжига, длительность отжига и термоциклирование. На рис. 2 представлены фотографии микроструктуры образцов в трех различных состояниях. Анализ показал, что после термоиспытаний наблюдается незначительная переориентация гидридов в радиальном направлении.

Зависимость коэффициентов ориентации от внутренних окружных напряжений для образцов серии испытаний 2 и 3 (см. рис. 1) представлены на рис. 3а. В обоих случаях наблюдается монотонное увеличение K_L с ростом напряжений.

Для оценки влияния скачка температуры, как одного из возможных сценариев при транспортировке или в процессе вакуумной сушки, была проведена серия испытаний 1 по режиму изотермической выдержки с дополнительным термопиком (см. рис. 1). На рис. 3б показан график зави-

симости K_L от окружных напряжений для образцов серий испытаний 1 и 3 (с термопиком и без). Видно, что для обоих видов образцов наблюдается практически линейный рост K_L с увеличением окружных напряжений, что свидетельствует о наличии зависимости между степенью ориентации гидридов и окружными напряжениями, при этом кратковременное повышение температуры до 380°C не вносит значительных изменений.

Имитация многократного термоциклирования, способного возникнуть во время транспортировки или вакуумной сушки, производилась на образцах серии испытаний 4 (см. рис. 1). На рис. 4а представлен график изменения K_L от числа циклов для образцов с содержанием водорода 100 и 200 ppm и окружными напряжениями 50 и 70 МПа. Явной зависимости между числом циклов и степенью ориентации при данных условиях испытаний обнаружено не было, что свидетельствует об отсутствии значимого эффекта термоциклирова-

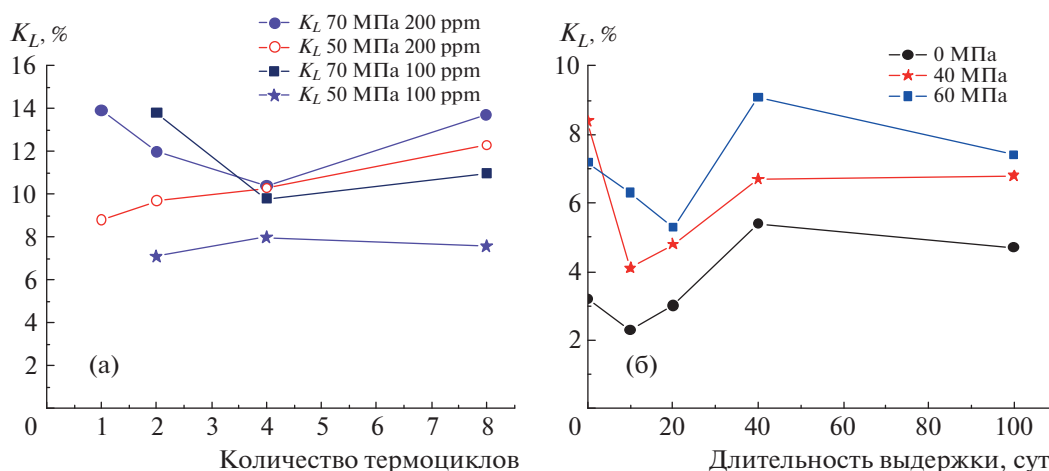


Рис. 4. Зависимость коэффициента ориентации гидридов от количества термоциклов для образцов серии испытаний 4.

ния в диапазоне температур 250–380°C при данных условиях испытаний.

Для определения влияния времени выдержки на ориентацию гидридов была проведена серия испытаний 5 (см. рис. 1) в диапазоне времени выдержки от 1 ч до 100 сут. Результаты представлены на рис. 4б. Видно, что при данных уровнях напряжений значительного увеличения переориентации гидридов с ростом времени выдержки обнаружено не было. На основании полученных значений коэффициентов ориентации был проведен множественный регрессионный анализ (табл. 2), который показал, что наибольший эффект на переориентацию гидридов оказывает уровень окружных напряжений (по результатам сравнения стандартизованных коэффициентов ориентации), при этом переориентация гидридов при определенных напряжениях наблюдается уже при часовой выдержке.

По результатам проведенных испытаний было установлено, что термомеханическое воздействие при различных условиях привело к переориентации гидридов, при этом значительная доля гидридов сохранила исходную тангенциальную ориентацию, а абсолютные значения коэффициентов ориентации не превышали 20%. Одной из причин столь малого эффекта может быть неполное растворение первичных гидридов тангенциальной ориентации при максимальной температуре (до 380°C) [13] или недостаточный уровень напряжений (до 100 МПа) во время испытаний.

3.2. Механические свойства

После термомеханических испытаний кольцевые образцы были подвергнуты механическим испытаниям на одноосное растяжение для определения влияния степени переориентации гидридов на механические свойства. На рис. 5 пред-

ставлены зависимости механических характеристик от коэффициента ориентации. Наблюдается монотонное снижение равномерного удлинения образцов с 5.9 до 3.5%, т.е. умеренная корреляция между коэффициентом ориентации и пластичностью (рис. 5а). Однако такая ситуация может резко измениться, если доля радиально направленных гидридов превысит некоторое пороговое значение, при котором произойдет резкая деградация механических свойств [1].

Зависимость предела прочности и условного предела текучести от K_L представлена на рис. 5б. Видно, что переориентация гидридов при данных условиях испытаний не оказывает влияние на прочностные свойства.

Таблица 2. Результаты множественного регрессионного анализа зависимости коэффициента ориентации K_L от параметров испытаний для образцов с содержанием водорода 100 и 200 ppm

Параметры регрессии	100 ppm	200 ppm
R-квадрат модели*	0.818	0.795
	β_i^{**}	
Окружные напряжения	0.863	0.864
Длительность выдержки	0.104	0.175
Количество термоциклов	0.104	0.240

* Нескорректированный коэффициент множественной детерминации.

** Стандартизованный коэффициент регрессии.

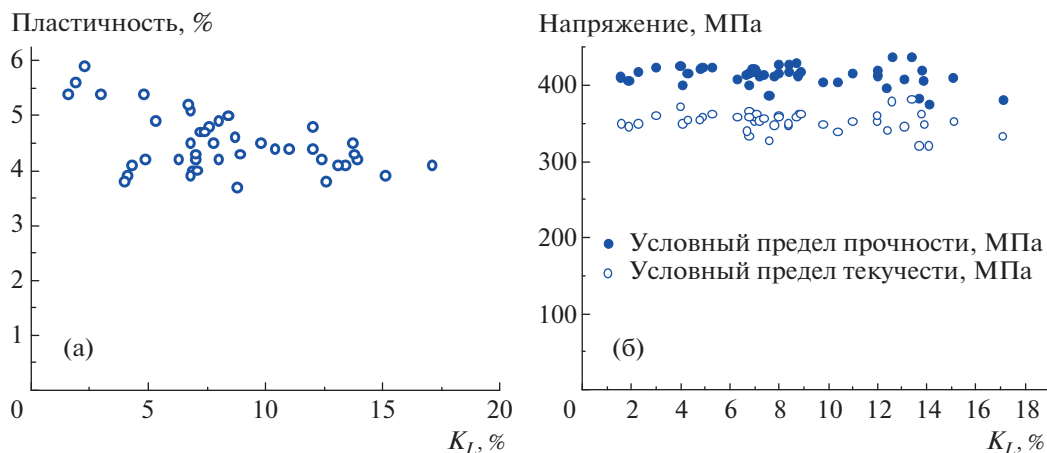


Рис. 5. Зависимость равномерного удлинения образцов, пределов прочности и текучести от коэффициента ориентации гидридов.

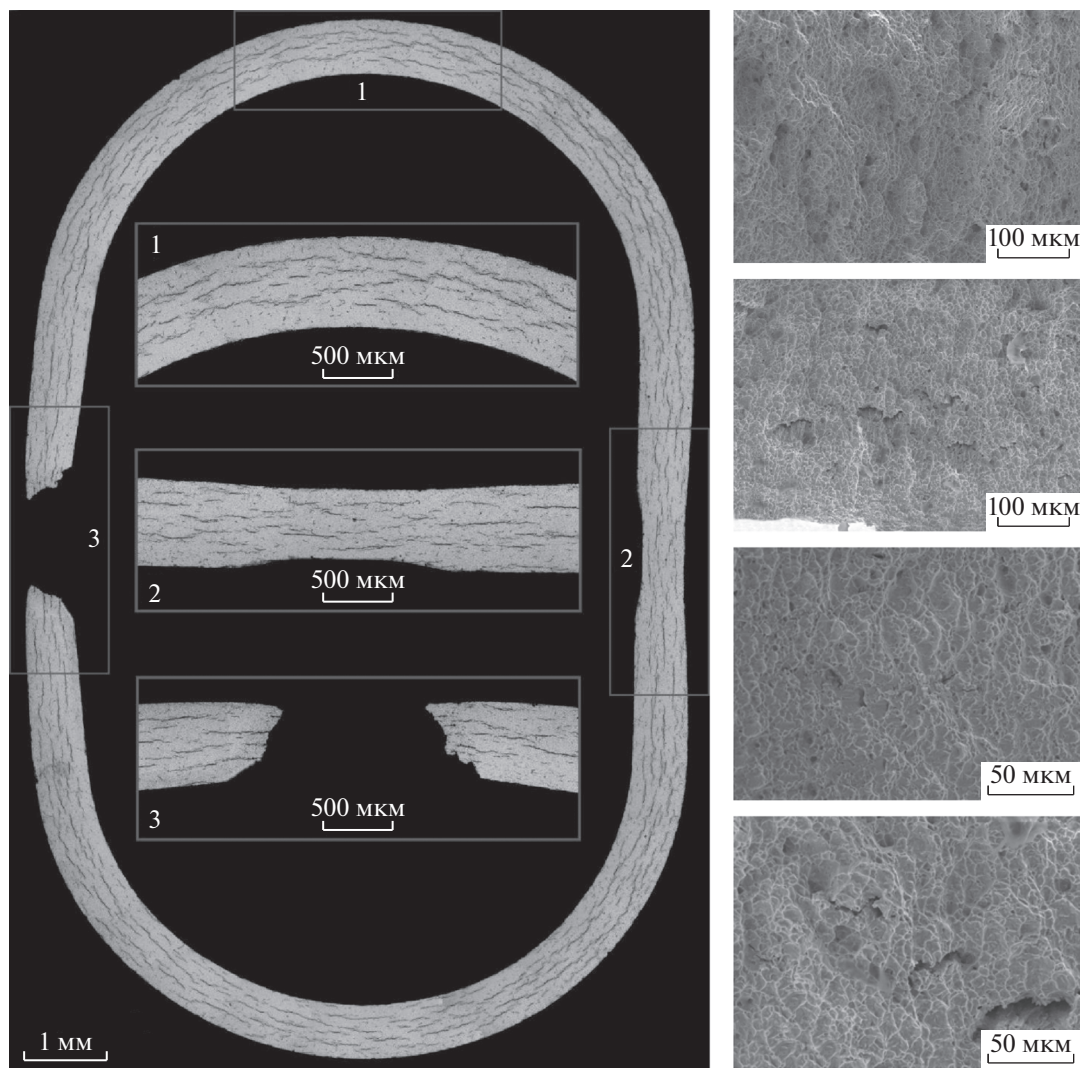


Рис. 6. Микроструктура гидридов после испытания кольцевого образца № 1 на растяжение (1 — исходная микроструктура; 2 — после пластической деформации; 3 — после разрушения) и изображения поверхности разрушения образцов № 1 и 2 после механических испытаний. Образец № 1: 100 ppm H, 70 МПа, 40 сут, 340°C, термоциклирование до 380°C, равномерное удлинение 3.5%. Образец № 2: 100 ppm H, 100 МПа, 40 сут, 340°C, равномерное удлинение 5%.

На рис. 6 показана микроструктура образца и изображения поверхности разрушения после испытаний кольцевых образцов на растяжение. Разрушение происходило по вязкому механизму и сопровождалось заметной пластической деформацией и образованием шейки. Фрактографический анализ выявил преимущественно ямочную структуру поверхности разрушения, образовавшуюся в результате зарождения и роста пор, и образование микротрещин вдоль тангенциальных гидридов. Тем не менее, хрупкого разрушения по гидридным фазам не наблюдалось из-за их преимущественной тангенциальной ориентации.

Проведенные термомеханические испытания, имитирующие условия сухого хранения, показали, что полученная переориентация гидридов была незначительной. Наблюдаемое по результатам механических испытаний кольцевых образцов снижение пластичности может быть связано с ростом коэффициента ориентации, при этом значительных изменений прочностных свойств не наблюдалось. Полученные результаты не позволяют экстраполировать модель деградации физических характеристик оболочек твэлов в процессе длительного хранения на критические условия, способные привести к разрушению твэлов. В связи с этим необходимо провести дополнительные испытания при более жестких условиях, чтобы определить уровень пороговых напряжений переориентации гидридов в оболочках твэлов из сплава Э110, приводящих к значимой деградации эксплуатационных характеристик.

Работа была проведена по заказу АО «ТВЭЛ» с использованием экспериментальной базы Исследовательского комплекса материаловедческих защитных камер НИЦ «Курчатовский институт». Результаты данной работы будут заложены в модель по обоснованию безопасности длительного сухого хранения ОЯТ реакторов ВВЭР-1000.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Под действием внутренних окружных напряжений произошла незначительная переориентация гидридов в радиальном направлении. Доля радиальных гидридов K_L не превышала 18% после испытаний при температуре изотермической выдержки 340°C, напряжениях до 100 МПа и времени выдержки до 100 сут. Дополнительное термоциклирование в температурном интервале 250–380°C со скоростью 6°C/ч не оказало заметного влияния на переориентацию.

2. По результатам регрессионного анализа было показано, что из всех рассматриваемых в данной работе параметров, влияющих на переориентацию гидридов, наиболее значимым является уровень окружных напряжений.

3. При данных режимах термомеханических испытаний резкого падения механических свойств не наблюдалось ввиду незначительной переориентации гидридов. По результатам механических испытаний на растяжение кольцевых образцов было выявлено снижение пластичности (равномерного удлинения) с 5.9 до 3.5%, что коррелирует с увеличением доли радиальных гидридов.

4. Несмотря на снижение пластичности фрактографический анализ поверхности разрушения растянутых образцов выявил вязкий тип разрушения, что сопровождалось заметной пластической деформацией и образованием шейки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Billone M.C. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 433. Nos. 1–3. P. 431.
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.10.002>
2. Motta A.T. et al. // J. Nucl. Mater. 2019. V. 518. P. 440.
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.02.042>
3. Kim Y.J. et al. // J. Nucl. Sci. Technol. 2015. V. 52. No. 5. P. 717.
<https://doi.org/10.1080/00223131.2014.978829>
4. Cladding Considerations for the Transportation and Storage of Spent Fuel. Nuclear Regulatory Commission. Interim Staff Guidance (ISG)-11. Rev. 3. 2003.
5. Kamimura K. Integrity Criteria of Spent Fuel for Dry Storage in Japan. Proc. International Seminar on Spent Fuel Storage. 2010. Tokyo.
6. IAEA-TECDOC-1385. 2004. Vienna: IAEA.
7. Wang Z. et al. // Metall. Mater. Trans. B. 2014. V. 45. No. 2. P. 532.
<https://doi.org/10.1007/s11663-013-9866-0>
8. Kurskiy R.A. et al. // Phys. Met. Metallogr. 2021. V. 122. P. 861.
<https://doi.org/10.1134/S0031918X21090076>
9. Yegorova L. et al. NUREG/IA-0156. 1999. U.S. Nuclear Regulatory Commission. Vol. 2.
10. Khatamian D. // J. Alloys Compd. 1999. V. 293. P. 893.
[https://doi.org/10.1016/S0925-8388\(99\)00388-6](https://doi.org/10.1016/S0925-8388(99)00388-6)
11. Kolesnik M. et al. // J. Nucl. Mater. 2018. V. 508. P. 567.
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.06.012>
12. Mani Krishna K.V. et al. // Acta Mater. 2006. V. 54. No. 18. P. 4665.
<https://doi.org/10.1016/j.actamat.2006.06.004>
13. Lee J.M. et al. // J. Nucl. Mater. 2018. V. 509. P. 285.
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.07.005>

Investigation of Hydride Reorientation in Unirradiated Cladding Tubes from E110 Alloy Under Long-Term Dry Storage Conditions

R. A. Kurskiy¹, *, A. V. Rozhkov¹, O. O. Zabusov¹, A. B. Gaiduchenko¹, A. S. Bragin¹,
D. A. Maltsev¹, and A.A. Shishkin²

¹*National Research Centre “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia*

²*“TVEL” JSC, Moscow, 115409 Russia*

**e-mail: kurskiy_ra@nrcki.ru*

Received December 16, 2020; revised June 21, 2021; accepted July 13, 2021

Abstract—Hydrides’ reorientation is one of the most critical mechanisms observed during dry storage of spent fuel, which can cause depressurization of the fuel element cladding. In this work hydrides reorientation of unirradiated gas pressurized samples made from VVER-1000 cladding material (Zr–1% Nb) has been investigated under conditions simulating long-term dry storage. Thermomechanical tests were conducted with samples containing 100 and 200 ppm of H according to different annealing scenarios with cladding hoop stresses up to 100 MPa. It was revealed that hydrides reorientation and induced plasticity decrease of the cladding material were not significant. Hoop stress level appeared to be the most significant factor that affects hydrides reorientation in the cladding.

Keywords: VVER-1000, zirconium, hydrides, fuel elements, dry storage, spent nuclear fuel