

Анализ вариантов и экспериментальное исследование топлива для водоохлаждаемых реакторов с повышенной устойчивостью к авариям (АКТОФ)

Заключительный доклад по проекту
координированных исследований

**IAEA**

Международное агентство по атомной энергии

НОРМЫ БЕЗОПАСНОСТИ МАГАТЭ И ДРУГИЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ДАННОЙ ТЕМЕ

НОРМЫ БЕЗОПАСНОСТИ МАГАТЭ

В соответствии со статьей III своего Устава МАГАТЭ уполномочено устанавливать или принимать нормы безопасности для защиты здоровья и сведения к минимуму опасностей для жизни и имущества и обеспечивать применение этих норм.

Публикации, посредством которых МАГАТЭ устанавливает нормы, выпускаются в Серии норм безопасности МАГАТЭ. В этой серии охватываются вопросы ядерной безопасности, радиационной безопасности, безопасности перевозки и безопасности отходов. **Категории публикаций в этой серии — это Основы безопасности, Требования безопасности и Руководства по безопасности.**

Информацию о программе по нормам безопасности МАГАТЭ можно получить на сайте МАГАТЭ в Интернете

www.iaea.org/ru/resursy/normy-bezopasnosti

На этом сайте содержатся тексты опубликованных норм безопасности и проектов норм безопасности на английском языке. Тексты норм безопасности выпускаются на арабском, испанском, китайском, русском и французском языках, там также можно найти глоссарий МАГАТЭ по вопросам безопасности и доклад о ходе работы над еще не выпущенными нормами безопасности. Для получения дополнительной информации просьба обращаться в МАГАТЭ по адресу: Vienna International Centre, PO Box 100, 1400 Vienna, Austria.

Всем пользователям норм безопасности МАГАТЭ предлагается сообщать МАГАТЭ об опыте их использования (например, в качестве основы для национальных регулирующих положений, для составления обзоров безопасности и учебных курсов) в целях обеспечения того, чтобы они по-прежнему отвечали потребностям пользователей. Эта информация может быть направлена через сайт МАГАТЭ в Интернете или по почте (см. адрес выше), или по электронной почте по адресу Official.Mail@iaea.org.

ПУБЛИКАЦИИ ПО ДАННОЙ ТЕМЕ

МАГАТЭ обеспечивает применение норм и в соответствии со статьями III и VIII.C своего Устава предоставляет сведения и способствует обмену информацией, касающейся мирной деятельности в ядерной области, и служит в этом посредником между своими государствами-членами.

Доклады по вопросам безопасности в ядерной деятельности выпускаются в качестве **докладов по безопасности**, в которых приводятся практические примеры и подробные описания методов, которые могут использоваться в поддержку норм безопасности.

Другие публикации МАГАТЭ по вопросам безопасности выпускаются в качестве публикаций по **аварийной готовности и реагированию, докладов по радиологическим оценкам, докладов ИНСАГ** — Международной группы по ядерной безопасности, **технических докладов** и документов серии **TECDOC**. МАГАТЭ выпускает также доклады по радиологическим авариям, учебные пособия и практические руководства, а также другие специальные публикации по вопросам безопасности.

Публикации по вопросам физической безопасности выпускаются в **Серии изданий МАГАТЭ по физической ядерной безопасности.**

Серия изданий МАГАТЭ по ядерной энергии состоит из информационных публикаций, предназначенных способствовать и содействовать научно-исследовательской работе в области ядерной энергии, а также развитию ядерной энергии и ее практическому применению в мирных целях. В ней публикуются доклады и руководства о состоянии технологий и успехах в их совершенствовании, об опыте, образцовой практике и практических примерах в области ядерной энергетики, ядерного топливного цикла, обращения с радиоактивными отходами и снятия с эксплуатации.

Анализ вариантов и экспериментальное исследование топлива для водоохлаждаемых реакторов с повышенной устойчивостью к авариям (АКТОФ)

*Заключительный доклад по проекту
координированных исследований*

АНАЛИЗ ВАРИАНТОВ
И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ
ИССЛЕДОВАНИЕ ТОПЛИВА ДЛЯ
ВОДООХЛАЖДАЕМЫХ РЕАКТОРОВ
С ПОВЫШЕННОЙ УСТОЙЧИВОСТЬЮ
К АВАРИЯМ (АКТОФ)

Членами Международного агентства по атомной энергии являются следующие государства:

АВСТРАЛИЯ	ИСПАНИЯ	ПЕРУ
АВСТРИЯ	ИТАЛИЯ	ПОЛЬША
АЗЕРБАЙДЖАН	ЙЕМЕН	ПОРТУГАЛИЯ
АЛБАНИЯ	КАЗАХСТАН	РЕСПУБЛИКА МОЛДОВА
АЛЖИР	КАМБОДЖА	РОССИЙСКАЯ ФЕДЕРАЦИЯ
АНГОЛА	КАМЕРУН	РУАНДА
АНТИГУА И БАРБУДА	КАНАДА	РУМЫНИЯ
АРГЕНТИНА	КАТАР	САЛЬВАДОР
АРМЕНИЯ	КЕНИЯ	САМОА
АФГАНИСТАН	КИПР	САН-МАРИНО
БАГАМСКИЕ ОСТРОВА	КИТАЙ	САУДОВСКАЯ АРАВИЯ
БАНГЛАДЕШ	КОЛУМБИЯ	СВЯТОЙ ПРЕСТОЛ
БАРБАДОС	КОМОРСКИЕ ОСТРОВА	СЕВЕРНАЯ МАКЕДОНИЯ
БАХРЕЙН	КОНГО	СЕЙШЕЛЬСКИЕ ОСТРОВА
БЕЛАРУСЬ	КОРЕЯ, РЕСПУБЛИКА	СЕНЕГАЛ
БЕЛИЗ	КОСТА-РИКА	СЕНТ-ВИНСЕНТ И ГРЕНАДИНЫ
БЕЛЬГИЯ	КОТ-Д'ИВУАР	СЕНТ-ЛЮСИЯ
БЕНИН	КУБА	СЕРБИЯ
БОЛГАРИЯ	КУВЕЙТ	СИНГАПУР
БОЛИВИЯ,	КЫРГЫЗСТАН	СИРИЙСКАЯ АРАБСКАЯ
МНОГОНАЦИОНАЛЬНОЕ	ЛАТВИЯ	РЕСПУБЛИКА
ГОСУДАРСТВО	ЛАОССКАЯ НАРОДНО-	СЛОВАКИЯ
БОСНИЯ И ГЕРЦЕГОВИНА	ДЕМОКРАТИЧЕСКАЯ	СЛОВЕНИЯ
БОТСВАНА	РЕСПУБЛИКА	СОЕДИНЕННОЕ КОРОЛЕВСТВО
БРАЗИЛИЯ	ЛЕСОТО	ВЕЛИКОБРИТАНИИ И
БРУНЕЙ-ДАРУССАЛАМ	ЛИБЕРИЯ	СЕВЕРНОЙ ИРЛАНДИИ
БУРКИНА-ФАСО	ЛИВАН	СОЕДИНЕННЫЕ ШТАТЫ
БУРУНДИ	ЛИВИЯ	АМЕРИКИ
ВАНУАТУ	ЛИТВА	СУДАН
ВЕНГРИЯ	ЛИХТЕНШТЕЙН	СЬЕРРА-ЛЕОНЕ
ВЕНЕСУЭЛА,	ЛЮКСЕМБУРГ	ТАДЖИКИСТАН
БОЛИВАРИАНСКАЯ	МАВРИКИЙ	ТАИЛАНД
РЕСПУБЛИКА	МАВРИТАНИЯ	ТОГО
ВЬЕТНАМ	МАДАГАСКАР	ТРИНИДАД И ТОБАГО
ГАБОН	МАЛАВИ	ТУНИС
ГАИТИ	МАЛАЙЗИЯ	ТУРКМЕНИСТАН
ГАЙАНА	МАЛИ	ТУРЦИЯ
ГАНА	МАЛЬТА	УГАНДА
ГВАТЕМАЛА	МАРОККО	УЗБЕКИСТАН
ГЕРМАНИЯ	МАРШАЛЛОВЫ ОСТРОВА	УКРАИНА
ГОНДУРАС	МЕКСИКА	УРУГВАЙ
ГРЕНАДА	МОЗАМБИК	ФИДЖИ
ГРЕЦИЯ	МОНАКО	ФИЛИППИНЫ
ГРУЗИЯ	МОНГОЛИЯ	ФИНЛЯНДИЯ
ДАНИЯ	МЬЯНМА	ФРАНЦИЯ
ДЕМОКРАТИЧЕСКАЯ	НАМИБИЯ	ХОРВАТИЯ
РЕСПУБЛИКА КОНГО	НЕПАЛ	ЦЕНТРАЛЬНОАФРИКАНСКАЯ
ДЖИБУТИ	НИГЕР	РЕСПУБЛИКА
ДОМИНИКА	НИГЕРИЯ	ЧАД
ДОМИНИКАНСКАЯ	НИДЕРЛАНДЫ	ЧЕРНОГОРИЯ
РЕСПУБЛИКА	НИКАРАГУА	ЧЕШСКАЯ РЕСПУБЛИКА
ЕГИПЕТ	НОВАЯ ЗЕЛАНДИЯ	ЧИЛИ
ЗАМБИЯ	НОРВЕГИЯ	ШВЕЙЦАРИЯ
ЗИМБАБВЕ	ОБЪЕДИНЕННАЯ РЕСПУБЛИКА	ШВЕЦИЯ
ИЗРАИЛЬ	ТАНЗАНИЯ	ШРИ-ЛАНКА
ИНДИЯ	ОБЪЕДИНЕННЫЕ	ЭКВАДОР
ИНДОНЕЗИЯ	АРАБСКИЕ ЭМИРАТЫ	ЭРИТРЕЯ
ИОРДАНИЯ	ОМАН	ЭСВАТИНИ
ИРАК	ПАКИСТАН	ЭСТОНИЯ
ИРАН, ИСЛАМСКАЯ	ПАЛАУ	ЭФИОПИЯ
РЕСПУБЛИКА	ПАНАМА	ЮЖНАЯ АФРИКА
ИРЛАНДИЯ	ПАРАГВАЙ	ЯМАЙКА
ИСЛАНДИЯ	ПАПУА — НОВАЯ ГВИНЕЯ	ЯПОНИЯ

Устав Агентства был утвержден 23 октября 1956 года на Конференции по выработке Устава МАГАТЭ, которая состоялась в Центральных учреждениях Организации Объединенных Наций в Нью-Йорке. Устав вступил в силу 29 июля 1957 года. Центральные учреждения Агентства находятся в Вене. Главной целью Агентства является достижение «более скорого и широкого использования атомной энергии для поддержания мира, здоровья и благосостояния во всем мире».

IAEA-TECDOC-1921

**АНАЛИЗ ВАРИАНТОВ
И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
ТОПЛИВА ДЛЯ ВОДООХЛАЖДАЕМЫХ
РЕАКТОРОВ С ПОВЫШЕННОЙ
УСТОЙЧИВОСТЬЮ К АВАРИЯМ (АКТОФ)**

**ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЙ ДОКЛАД ПО ПРОЕКТУ
КООРДИНИРОВАННЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ**

**МЕЖДУНАРОДНОЕ АГЕНТСТВО ПО АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ
ВЕНА, 2022 год**

УВЕДОМЛЕНИЕ ОБ АВТОРСКОМ ПРАВЕ

Все научные и технические публикации МАГАТЭ защищены положениями Всемирной конвенции об авторском праве, принятой в 1952 году (Берн) и пересмотренной в 1972 году (Париж). Впоследствии авторские права были распространены Всемирной организацией интеллектуальной собственности (Женева) также на интеллектуальную собственность в электронной и виртуальной форме. Для полного или частичного использования текстов, содержащихся в печатных или электронных публикациях МАГАТЭ, должно быть получено разрешение, которое обычно оформляется соглашениями типа роялти. Предложения о некоммерческом воспроизведении и переводе приветствуются и рассматриваются в каждом случае в отдельности. Вопросы следует направлять в Издательскую секцию МАГАТЭ по адресу:

Группа маркетинга и сбыта (Marketing and Sales Unit)

Издательская секция

Международное агентство по атомной энергии

Венский международный центр,

а/я 100,

A1400 Вена, Австрия

Факс: +43 1 26007 22529

Тел.: +43 1 2600 22417

Эл. почта: sales.publications@iaea.org

<https://www.iaea.org/ru/publikacii>

За дополнительной информацией о данной публикации просьба обращаться по адресу:

Секция ядерного топливного цикла и материалов

Международное агентство по атомной энергии

Венский международный центр

PO Box 100

1400 Vienna, Austria

эл. почта: Official.Mail@iaea.org

© МАГАТЭ, 2022

Напечатано МАГАТЭ в Австрии

Июль 2022 года

ISBN 978-92-0-424920-0 (печатный формат)

ISBN 978-92-0-425020-6 (формат pdf)

ISSN 2414-5181

ПРЕДИСЛОВИЕ

Атомная энергетика зарекомендовала себя как надежный, экологически устойчивый и экономичный источник крупномасштабного производства электроэнергии. В интересах дальнейшего технологического совершенствования во всем мире предпринимаются усилия, направленные на дальнейшее повышение эксплуатационной надежности, экономичности и безопасности в нормальных условиях и переходных режимах. На большинстве существующих атомных электростанций используются легководные реакторы с топливными таблетками из диоксида урана и оболочкой твэлов из циркониевого сплава. Десятилетия исследований и непрерывной эксплуатации обеспечили устойчивое развитие технологий и получение обширных данных, опыта и базы знаний о характеристиках топлива легководных реакторов в нормальных условиях эксплуатации и в аварийных условиях. Особое внимание было уделено разработке топлива с более глубоким выгоранием с целью минимизации отходов и увеличению плотности энерговыделения для повышения мощности, а также надежности топлива. События на атомной электростанции «Фукусима-Дайити», а также прогресс в разработке усовершенствованных материалов обеспечили мотивацию для улучшения ядерных характеристик и повышения безопасности, что способствовало бы смягчению последствий серьезных аварий. Это соответствовало рекомендациям организованного МАГАТЭ совещания международных экспертов по повышению эффективности научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ в свете аварии на АЭС «Фукусима-дайти», проведенного в Вене в 2015 году. Эти рекомендации, которые отражали мнения экспертов о необходимости дальнейшей деятельности в области НИОКР и международных совместных усилий, были дополнительно уточнены на техническом совещании по стратегиям и приоритетам НИОКР после фукусимской аварии, состоявшемся в декабре 2015 года.

К новым разрабатываемым технологиям относится толерантное топливо, которое способно повысить безопасность на атомных электростанциях, обеспечивая улучшенные характеристики в сценариях нормальной эксплуатации, переходных режимов и в аварийных сценариях. Эти новые виды топлива и оболочки подлежат лицензированию перед их промышленным использованием, и поэтому проводятся исследования для оценки их поведения в условиях нормальной эксплуатации и аварийных условиях.

Для разработки и верификации компьютерных кодов, моделирующих поведение ядерного топлива в различных условиях, необходимы обширные и надежные экспериментальные данные, получаемые в результате продолжительных и дорогостоящих исследований. Именно поэтому международное сотрудничество в этой области является весьма желательным. МАГАТЭ традиционно поддерживает заинтересованные государства-члены в их усилиях по расширению возможностей своих компьютерных кодов, используемых для прогнозирования поведения топлива. Проект координированных исследований (ПКИ) «Анализ вариантов и экспериментальное исследование топлива для водоохлаждаемых реакторов с повышенной устойчивостью к авариям (АКТОФ)» дополнял эти усилия посредством рассмотрения моделирования и разработки передовых концепций топлива, оказывая поддержку сбору экспериментальных данных, которые будут необходимы для внедрения таких видов топлива на коммерческих реакторах. Данный ПКИ являлся продолжением Плана действий МАГАТЭ по ядерной безопасности и был осуществлен после Технического совещания по концепциям устойчивого к авариям топлива легководных реакторов, которое состоялось в Соединенных Штатах Америки в 2014 году.

Осуществление АКТОФ стало возможным благодаря поддержке и приверженности многих организаций и специалистов. МАГАТЭ выражает благодарность Технической рабочей группе по характеристикам и технологии топлива (ТРГ-ХТТ) за предложение осуществить этот ПКИ и оказание ему поддержки. МАГАТЭ также хотело бы поблагодарить всех участвовавших в подготовке промежуточного рабочего материала и заключительного доклада. Сотрудником МАГАТЭ, ответственным за настоящую публикацию, являлся М. Вещунов из Отдела ядерного топливного цикла и технологии обращения с отходами.

РЕДАКЦИОННОЕ ПРИМЕЧАНИЕ

Настоящая публикация подготовлена на основе оригинального материала, представленного соавторами, и не редактировалась редакционным персоналом МАГАТЭ. Ответственность за выраженные в ней мнения несут соавторы, и эти мнения необязательно отражают точку зрения МАГАТЭ или его государств-членов.

Ни МАГАТЭ, ни его государства-члены не несут ответственности за последствия, которые могут возникнуть в результате использования настоящей публикации. В настоящей публикации не затрагиваются вопросы ответственности — юридической или иного рода — за действия или бездействие со стороны какого-либо лица.

Использование тех или иных названий стран или территорий не означает какого-либо суждения со стороны издателя — МАГАТЭ — относительно правового статуса таких стран или территорий, их органов и учреждений либо относительно определения их границ.

Упоминание названий конкретных компаний или продуктов (независимо от того, указаны ли они как зарегистрированные) не означает какого-либо намерения нарушить права собственности и не должно рассматриваться как одобрение или рекомендация со стороны МАГАТЭ.

Авторы несут ответственность за получение необходимого разрешения, с тем чтобы МАГАТЭ могло воспроизводить, переводить или использовать материал из источников, уже защищенных авторскими правами.

МАГАТЭ не несет ответственности за постоянство и точность приводимых в настоящей публикации адресов сайтов внешних или третьих сторон и не гарантирует того, что информационное наполнение таких сайтов является или останется точным и релевантным.

СОДЕРЖАНИЕ

1.	ВВЕДЕНИЕ	1
1.1.	ОБЩИЕ СВЕДЕНИЯ	1
1.2.	ЦЕЛИ	1
1.3.	СФЕРА ОХВАТА	2
1.4.	СТРУКТУРА	2
2.	СВОЙСТВА МАТЕРИАЛОВ	3
2.1.	Оболочка из FeCrAl	3
2.1.1.	Теплофизические свойства	4
2.1.2.	Механические свойства	4
2.1.3.	Тепловая и радиационная ползучесть	5
2.1.4.	Распухание	6
2.1.5.	Окисление	6
2.1.6.	Критерий отказа с разрывом оболочки	7
2.2.	Топливо на основе U_3Si_2	7
2.2.1.	Удельная теплоемкость	8
2.2.2.	Теплопроводность	8
2.2.3.	Температуропроводность	9
2.2.4.	Коэффициент теплового расширения	9
2.2.5.	Модуль Юнга и коэффициент Пуассона	9
2.2.6.	Распухание	9
2.3.	Оболочка из SiC	10
2.3.1.	Удельная теплоемкость	10
2.3.2.	Теплопроводность	10
2.3.3.	Коэффициент излучения	11
2.3.4.	Объемное тепловое расширение	12
2.3.5.	Коэффициент упругости	13
2.3.6.	Ползучесть	14
2.3.7.	Предел текучести	14
2.3.8.	Радиационное распухание	14
2.3.9.	Окисление	15
2.4.	СПЛАВ 348	15
3.	ДОКЛАД О КРУГОВОМ ИССЛЕДОВАНИИ В РАМКАХ АКТОФ	17
3.1.	Круговое исследование: цели и мотивация	17
3.2.	Изготовление образцов	18
3.2.1.	Бразильский УСП: Нержавеющая сталь марки AISI 348	18
3.2.2.	ЧТУ/UJP, Чешская Республика: PVD Cr покрытия	19
3.2.3.	ТИК, Германия: PVD покрытия MAX-фаза	21
3.2.4.	ИЯХТ, Польша: PVD ZrSi-Cr покрытия	22
3.3.	Испытания на длительную коррозию	24
3.4.	Установки, условия и экспериментальные методы	25
3.4.1.	ЧТУ/UJP	26
3.4.2.	VTT	27
3.4.3.	ИЯХТ	27
3.5.	Результаты: ЧТУ/UJP	31
3.6.	Результаты: VTT	37
3.6.1.	Сплавы на основе Zr без покрытия: эталонные образцы	37
3.6.2.	Zr ₉₀ -2 с PVD Cr покрытием	41

3.6.3.	Zry-4 с PVD Cr/Cr ₂ AlC/Cr покрытием (MAX-фаза).....	46
3.6.4.	Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием.....	52
3.6.5.	Нержавеющая сталь марки AISI 348	54
3.7.	Результаты: ИЯХТ.....	56
3.7.1.	Сплавы на основе Zr без покрытия: эталонные образцы.....	56
3.7.2.	Zry-2 с PVD Cr покрытием	59
3.7.3.	Zry-4 с PVD Cr/Cr ₂ AlC/Cr покрытием (MAX-фаза).....	61
3.7.4.	Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием.....	63
3.7.5.	Нержавеющая сталь марки AISI 348	65
3.8.	Обсуждение.....	67
4.	ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ОКИСЛЕНИЕ	70
4.1.	Экспериментальные процедуры и установки	71
4.1.1.	ЧТУ/UJP	71
4.1.2.	VTT	74
4.1.3.	ТИК.....	74
4.1.4.	МТА ЕК	76
4.2.	Результаты: ЧТУ/UJP	78
4.3.	Результаты: VTT	94
4.3.1.	Zry-2 с Cr покрытием	94
4.3.2.	Zry-4 с PVD CR/Cr ₂ ALC/Cr (MAX-фаза) покрытием.....	99
4.3.3.	Нержавеющая сталь марки AISI 348	105
4.4.	Результаты: ТИК.....	110
4.4.1.	Zry-2 с PVD Cr покрытием	110
4.4.2.	Zry-4 с PVD покрытием MAX-фаза.....	112
4.4.3.	Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием.....	114
4.4.4.	Нержавеющая сталь марки AISI 348	115
4.5.	Результаты: МТА ЕК	117
4.5.1.	Окисление в атмосфере водяного пара: Zr1%Nb с PVD Cr покрытием.....	117
4.5.2.	Испытание на окисление в атмосфере воздуха образцов из Zr1%Nb с PVD Cr покрытием.....	119
4.5.3.	Испытания на сжатие кольца	120
4.5.4.	Исследования методом СЭМ	124
4.5.5.	Металлография и микротвердость.....	127
4.6.	Обсуждение.....	129
5.	СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПО МОДЕЛИРОВАНИЮ FE/CrAl ОБОЛОЧКИ	131
5.1.	Введение.....	131
5.2.	Спецификации для расчетов в рамках сравнительных исследований.....	132
5.2.1.	Исследования для случаев нормальных условий эксплуатации	132
5.2.2.	Исследования для случаев условий аварии с потерей теплоносителя	134
5.3.	Описание кодов расчета характеристик топлива.....	135
5.3.1.	BISON.....	135
5.3.2.	TRANSURANUS	136
5.3.3.	FEMAXI	137
5.3.4.	FRAPCON-USP.....	139
5.3.5.	VACO.....	139
5.4.	Результаты сравнительных исследований для нормальных условий эксплуатации	140
5.4.1.	Эталонные расчеты для оболочки из циркалоя-4.....	141
5.4.2.	Сравнение результатов расчета для оболочки из FeCrAl	146

5.5.	Результаты сравнительных исследований для условий аварии с потерей теплоносителя	151
5.5.1.	Прогнозы зависимости от времени окружной деформации для FeCrAl	152
5.5.2.	Прогнозы отказа с разрывом для FeCrAl и сравнения с циркалом-4.....	153
5.6.	Выводы и рекомендации.....	155
6.	СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ДАННЫХ ИСПЫТАНИЯ ПУЧКА ТВЭЛОВ QUENCH-19 С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ КОДОВ ATHLET-CD И СОКРАТ	158
6.1.	Введение.....	158
6.2.	Температурная история QUENCH-19 для различных отметок высоты в пучке твэлов	160
6.3.	Выход водорода при проведении QUENCH-19	162
6.4.	Выводы	165
	ВЫВОДЫ И БУДУЩАЯ РАБОТА	167
	СПРАВОЧНЫЕ МАТЕРИАЛЫ.....	169
	ПРИЛОЖЕНИЕ.....	177
	СОКРАЩЕНИЯ	179
	СПИСОК ГЛАВНЫХ НАУЧНЫХ ИССЛЕДОВАТЕЛЕЙ.....	181
	СОСТАВИТЕЛИ И РЕЦЕНЗЕНТЫ	183

1. ВВЕДЕНИЕ

1.1. ОБЩИЕ СВЕДЕНИЯ

Ядерное топливо водоохлаждаемых реакторов (как легководных реакторов (LWR), так и корпусных тяжеловодных реакторов (PHWR)) изготавливается в основном в виде таблеток из диоксида урана в оболочке из циркониевого сплава. За время, прошедшее с тех пор, как топливо этого типа начали использовать в 1960-х и 1970-х годах, топливные таблетки и оболочка постоянно совершенствовались, и сегодня выгорание топлива LWR, как правило, достигает значений, превышающих 60 МВт·сут/kgU, что примерно в три раза превышает выгорание топлива ранних конструкций. Повышение выгорания топлива и длительный опыт эксплуатации сопровождались значительными усовершенствованиями в области безопасности топлива и поэтому отказы топлива в нормальных условиях эксплуатации или переходных режимах в настоящее время редки.

Однако опыт аварии на АЭС «Фукусима-дайити» в Японии подчеркнул уязвимость циркониевой оболочки при воздействии условий тяжелой аварии. В ходе этой аварии на протяжении многих дней не обеспечивался отвод тепла, и перегретая оболочка реагировала с паром с образованием водорода. В результате роста температуры это привело к расплавлению топлива и взрыву водорода. В связи с этим событием считается важным исследовать другие конструкции топлива, которые будут более устойчивы к таким серьезным авариям, сохраняя при этом надежность и потенциал выгорания современных конструкций топлива. Многие государства-члены в настоящее время рассматривают новые типы топлива, от использования стойкого к окислению покрытия на циркониевой оболочке и до применения альтернативных видов топлива и материалов оболочки.

Эти новые виды топлива/оболочки, которые находятся на стадии разработки, подлежат лицензированию перед их промышленным использованием, и поэтому проводятся исследования для оценки их поведения в различных условиях.

Разработка и верификация компьютерных кодов для моделирования поведения ядерного топлива возможны только на основе высококачественных экспериментальных данных, для получения которых требуются весьма длительные и дорогостоящие исследования. Именно поэтому международное сотрудничество в этой области является весьма желательным, и МАГАТЭ традиционно поддерживает заинтересованные государства-члены в их усилиях по расширению возможностей компьютерных кодов, используемых ими для прогнозирования поведения топлива.

1.2. ЦЕЛИ

Целями и сферой охвата ПКИ МАГАТЭ по анализу вариантов и экспериментальному исследованию топлива водоохлаждаемых реакторов с повышенной устойчивостью к авариям (АКТОФ) (2015–2019 годы) были сбор данных путем проведения экспериментов по новым типам топлива и материалам оболочки, развитие потенциала моделирования для прогнозирования поведения компонентов и общих характеристик конструкций толерантного топлива в нормальных условиях и переходных режимах, а также демонстрация улучшений в условиях тяжелых аварий. Ставилась задача предоставить государствам-членам информацию о возможных вариантах повышения безопасности атомных электростанций в нормальных и аварийных условиях.

Лицензирование новых материалов ATF (толерантного топлива) требует проведения серии испытаний и оценок безопасности, в которых участвуют различные эксперты — представители промышленности и регулирующих органов. Это приводит к необходимости координированных усилий по проведению испытаний, оценки и моделирования новых материалов. Вот почему основное внимание в рамках ПКИ АКТОФ было сосредоточено на следующих двух важных для ATF областях:

- сборе высококачественных данных испытаний для потенциальных материалов ATF, которые могут использоваться для оценки характеристик и безопасности, а также разработке моделей материалов в кодах для расчета характеристик топлива;
- пересмотре и совершенствовании компьютерных кодов с использованием данных испытаний и справочной литературы с целью моделирования и прогнозирования поведения ATF в активной зоне.

1.3. СФЕРА ОХВАТА

В рамках ПКИ были проанализированы различные варианты ATF, что привело к улучшению понимания поведения ATF и развитию технологий ATF в государствах-членах. Например, в ходе круговых испытаний были изготовлены, испытаны, охарактеризованы и проанализированы несколько материалов оболочки с покрытием. Для государств-членов важное значение имеют обратные связи, направленные на совершенствование их концепций и деятельности по разработке ATF.

Коды для расчета характеристик топлива от участвующих организаций были значительно расширены для анализа нескольких концепций ATF (включая оболочки из FeCrAl и SiC, циркаловые оболочки с покрытием и топливо на основе силицида урана (U_3Si_2)). Кроме того, было проведено сравнительное исследование, в ходе которого расширенные коды сравнивались в плане анализа поведения топливных стержней как в нормальных условиях эксплуатации, так и в условиях проектной аварии. Наряду с этим были применены интегральные коды (ATHLET-CD и СОКРАТ), а результаты расчета были сопоставлены с данными испытаний пучков твэлов в условиях тяжелой аварии QUENCH-19 с использованием имитаторов топливных стержней с FeCrAl оболочкой.

1.4. СТРУКТУРА

В настоящей публикации обобщены результаты и выводы ПКИ АКТОФ в рамках плана работы, совместно согласованного 17 участвующими организациями из 13 государств-членов. В конце настоящей публикации приведен список главных научных исследователей из участвовавших организаций.

Настоящая публикация состоит из шести разделов. В разделе 2 кратко изложены свойства материалов топливных оболочек, изученных в рамках ПКИ. В разделе 3 представлены результаты круговых испытаний, проведенных в рамках ПКИ, включая изготовление образцов и их испытания на длительную коррозию, в то время как в разделе 4 сравниваются результаты исследований высокотемпературного окисления различных образцов. В разделе 5 представлены результаты сравнительных исследований поведения FeCrAl оболочки при нормальных условиях эксплуатации и условиях проектной аварии с потерей теплоносителя (LOCA) с использованием нескольких кодов для расчета характеристик топлива, расширенных с целью анализа усовершенствованных материалов оболочки. В разделе 6 описано сравнительное исследование испытаний пучков твэлов QUENCH-19 с использованием интегральных кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

В приложении к настоящему докладу содержится подборка материалов, отражающих индивидуальные вклады участников в подготовку данного документа категории TECDOC.

2. СВОЙСТВА МАТЕРИАЛОВ

2.1. Оболочка из FeCrAl

Одной из наиболее значительных проблем аварии на АЭС «Фукусима-дайти» было окисление циркалоя, которое привело к интенсивному образованию водорода в активной зоне. В качестве материалов оболочки тепловыделяющих элементов LWR с повышенной устойчивостью к авариям были предложены устойчивые к окислению сплавы FeCrAl. Скорости окисления FeCrAl на один-три порядка ниже, чем у циркалоя [1–4]. Более того, жесткость FeCrAl примерно в два раза выше, чем у циркалоя [1], а предел текучести – в четыре раза выше [4]. Температура плавления сплавов FeCrAl находится в пределах 1525–1540°C [5]. Хотя коррозионная стойкость FeCrAl полезна с точки зрения устойчивости к авариям, его сечение поглощения тепловых нейтронов примерно в десять раз превышает соответствующее значение для циркалоя. Это повышенное поглощение нейтронов может быть частично компенсировано уменьшением толщины оболочки. Это позволяет несколько увеличить радиус таблетки при сохранении зазора между таблеткой и оболочкой. Однако, помимо некоторого увеличения радиуса таблеток, для компенсации повышенного поглощения нейтронов, по-видимому, необходимо обеспечивать обогащение топлива выше нынешнего предела 5% [6]. Современные оценки показывают, что это приведет к увеличению стоимости топлива на 15–35% [1, 4]. Более того, ожидается повышенный выход трития в теплоноситель, поскольку проникающая способность водорода в сплаве FeCrAl примерно в 100 раз выше, чем в циркалое [7]. И наконец, все еще необходимо полностью экспериментально охарактеризовать радиационное упрочнение и охрупчивание FeCrAl [8].

В настоящее время проводятся разработка и определение характеристик сплавов FeCrAl для применения в качестве материала оболочки ядерного топлива. Данные о свойствах материалов по-прежнему ограничены и, в основном, получены путем внереакторных испытаний. Однако недавно в Окриджской национальной лаборатории (ОРНЛ) была проведена работа по разработке сплавов FeCrAl специально для ядерных применений [3, 9–12]. В конечном итоге эта работа привела к разработке и определению характеристик оптимизированного в лабораторных условиях сплава FeCrAl, известного как C35M [9]. Этот сплав (или аналогичный ему) является ведущим претендентом на использование в испытательном стержне или сборке в коммерческом реакторе в 2022 году, поскольку радиационные испытания были проведены на реакторе «Халден» [11] и проводятся на усовершенствованном испытательном реакторе (УИР) в АНЛ [13]. FeCrAl сплав C35M ОРНЛ представляет собой сплав состава Fe-13Cr-4,5Al + Y с небольшими легирующими добавками молибдена и кремния. Состав сплава приведен в таблице 1.

На основе экспериментальных данных, полученных в ходе испытаний, проведенных в ОРНЛ и на реакторе «Халден», исследователи в ОРНЛ и АНЛ разработали эмпирические модели свойств и поведения C35M [3, 9–11, 14]. В частности, были разработаны модели для теплофизических свойств как функции температуры, температурной и радиационной ползучести, объемного распухания и окисления. Кроме того, был разработан критерий отказа для FeCrAl в условиях аварии с потерей теплоносителя (LOCA) [14]. В последние годы были опубликованы данные о моделях и свойствах по результатам разработок ОРНЛ и АНЛ [3, 9– 11, 14].

На основе этой работы был сформирован набор свойств материала и моделей для FeCrAl C35M. Для областей, в которых экспериментальные данные по C35M отсутствуют, использовались данные коммерческого сплава Kanthal APMT [14]. Несмотря на то, что в будущем этот набор свойств может расширяться и обновляться, он достаточно полон и позволяет производить расчеты эксплуатационных характеристик топлива с FeCrAl оболочкой. Эта информация была предоставлена участникам сравнительного исследования по моделированию FeCrAl, организованного в рамках АКТОФ [15]. Обзорные сведения по этому набору свойств материала и моделей для FeCrAl C35M приведены в следующих подразделах.

ТАБЛИЦА 1. НОМИНАЛЬНАЯ КОМПОЗИЦИЯ FECRAL СПЛАВА C35M ОРНЛ [9].

Fe	Cr	Al	Y	Mo	Si	Примечания
80,15	13	4,5	0,15	2	0,2	Дуговая плавка + гор. прокатка

2.1.1. Теплофизические свойства

Данные о теплопроводности и удельной теплоемкости сплава Kanthal АРМТ (использованные в отсутствие данных о тепловых свойствах С35М) были получены из [16]. Значения показаны соответственно в таблице 2 и таблице 3. Использовалась кусочно-линейная интерполяция, описанная в [14]. Значения коэффициента теплового расширения (КТР) в зависимости от температуры были также получены из [16]. В таблице 4 приведены средние значения КТР для различных температурных диапазонов. Для получения мгновенного значения коэффициента теплового расширения в зависимости от температуры в [14] использовалась методология Ниффенеггера и Рейхлина [17].

ТАБЛИЦА 2. ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ СПЛАВА KANTHAL АРМТ [16]

Температура (К)	Теплопроводность (Вт/м·К)
323	11
873	21
1073	23
1273	27
1473	29

ТАБЛИЦА 3. УДЕЛЬНАЯ ТЕПЛОЕМКОСТЬ СПЛАВА KANTHAL АРМТ [16]

Температура (К)	Удельная теплоемкость (Дж/кг·К)
293	480
173	560
673	640
873	710
1073	670
1273	690
1473	700

ТАБЛИЦА 4. КОЭФФИЦИЕНТ ТЕПЛООВОГО РАСШИРЕНИЯ (КТР) СПЛАВА KANTHAL АРМТ [16]

Температурный диапазон (К)	КТР (мкм/м·К)
293–523	12,4
293–773	13,1
293–1023	13,6
293–1273	14,7
293–1473	15,4

2.1.2. Механические свойства

Данные о температурной зависимости модуля Юнга и коэффициента Пуассона для С35М были получены из работы Томпсона и др. [10]:

$$E = -5,46 \times 10^{-5} T^2 - 3,85 \times 10^{-2} T + 1,99 \times 10^2 \quad (1)$$

$$\nu = 3,85 \times 10^{-5} T - 2,68 \times 10^{-1} \quad (2)$$

где

E модуль Юнга (ГПа);

ν коэффициент Пуассона;

T температура ($^{\circ}\text{C}$).

Эти уравнения действительны для температур в диапазоне от 25 до 850°C .

Данные о пределе текучести (ПТ) и пределе прочности на растяжение (ППР) для С35М в зависимости от температуры были предоставлены Ямамото и др. [9] и показаны соответственно в таблице 5 и таблице 6. Использовалась кусочно-линейная интерполяция данных, описанная в [14]. Согласно данным наблюдений для других ферритных и мартенситных сталей [18], ППР плавно снижается, достигая нуля в точке плавления. В связи с этим в точке плавления С35М (1773 K) для линейной интерполяции [14] была добавлена точка данных с значением ППР, равным нулю. Учитывая, что при температурах в середине диапазона ПТ приближается к ППР, в точке плавления также было установлено нулевое значение ПТ.

ТАБЛИЦА 5. ПРЕДЕЛ ТЕКУЧЕСТИ FeCrAl СПЛАВА С35М [9, 14]

Температура (К)	Предел текучести (МПа)
291	447
546	314
640	296
825	226
1007	67
1773	0

ТАБЛИЦА 6. ПРЕДЕЛ ПРОЧНОСТИ НА РАСТЯЖЕНИЕ FeCrAl СПЛАВА С35М [9, 14]

Температура (К)	Предел прочности на растяжение (МПа)
295	569
551	543
644	527
830	289
1012	65
1773	0

2.1.3. Тепловая и радиационная ползучесть

Модели тепловой и радиационной ползучести FeCrAl сплава С35М приведены в [11] и основаны на экспериментальных данных внутриреакторных и вне реакторных испытаний ползучести, проведенных на реакторе «Халден» и в ОРНЛ. Корреляция для тепловой ползучести записывается в виде степенного закона Нортона

$$\dot{\epsilon} = 2,89 \times 10^{-36} \sigma^{5,5} \exp\left(\frac{-29709}{T}\right) \quad (3)$$

при температурах ниже 873 K . При температурах выше 873 K используется корреляция от Саундерса и др. [19]

$$\dot{\varepsilon} = 5,96 \times 10^{-27} \sigma^{5,5} \exp\left(\frac{-47136}{T}\right) \quad (4)$$

где

$\dot{\varepsilon}$ — скорость ползучести (с^{-1});
 σ — эффективное напряжение (по Мизесу) (Па);
 T — температура (К).

В [11] для радиационной ползучести рекомендуется использовать значение коэффициента ползучести, равное 5×10^{-6} на МПа на с.н.а. При использовании переводного коэффициента 1×10^{25} нейтронов·м⁻² = 0,9 с.н.а. [20] получается следующая корреляция для радиационной ползучести [14]

$$\dot{\varepsilon} = 4,5 \times 10^{-31} \sigma \varphi \quad (5)$$

где

σ — эффективное напряжение (МПа);
 φ — поток быстрых нейтронов (нейтронов·м⁻²·с⁻¹).

2.1.4. Распухание

Для моделирования распухания С35М в [14] был предложен предварительный подход, согласно которому используется верхний предел скорости распухания от Террани и др. [11], равный 0,05% на с.н.а. При использовании такого же переводного коэффициента, что и в случае радиационной ползучести, т.е. 1×10^{25} нейтронов/м⁻² = 0,9 с.н.а. [20], интеграция по времени приводит к следующей корреляции для объемной деформации распухания

$$\varepsilon = 4,5 \times 10^{-29} \Phi \quad (6)$$

где Φ — флюенс быстрых нейтронов (нейтронов·м⁻²).

2.1.5. Окисление

Окисление контактирующего с теплоносителем FeCrAl при нормальных рабочих температурах исследовали Террани и др. в ходе автоклавных экспериментов [3]. Эксперименты проводились при температуре 330°C для условий PWR и 290°C для условий BWR. Кинетика окисления определяется параболическим законом роста богатого хромом слоя хромита (FeCr₂O₄)

$$w = k\sqrt{t} \quad (7)$$

где

k — константа параболической скорости окисления ($\text{мг} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{ч}^{-1/2}$);
 t — время (ч).

При этом толщина слоя хромита задается выражением

$$\delta = w / \rho_{ox} \quad (8)$$

где ρ_{ox} — плотность кислорода в хромите (1440 кг/м³) [3].

Значения константы параболической скорости, приведенные в [3], составляют $3,96 \times 10^{-3}$ для ВХР PWR и $4,51 \times 10^{-4}$ мг·см⁻²·ч^{-1/2} для ВХР BWR-NWC (нормальный ВХР). Эти константы скорости соответствуют сплаву FeCrAl с составом Fe-13Cr-4Al, который среди сплавов, исследованных в [3], наиболее близко представляет С35М. Следует отметить, что эти параметры не зависят от температуры. Для того, чтобы можно было учесть температурную зависимость скорости окисления, будут необходимы новые данные. Однако нынешняя модель является репрезентативной для поведения FeCrAl в нормальных условиях эксплуатации. Следует также отметить, что, помимо образования пленки окалина, произойдет дополнительное растворение металла в воде, что приведет к дальнейшему уменьшению общей толщины оболочки [3]. Этот процесс растворения не происходит в оболочках на основе циркония.

2.1.6. Критерий отказа с разрывом оболочки

Модель отказа для FeCrAl в условиях аварии с потерей теплоносителя (LOCA) была разработана в АНЛ [14]. Эта модель состоит из критерия перенапряжения, который устанавливает, что отказ оболочки происходит, когда локальное окружное напряжение превышает предельное напряжение разрыва. Эта концепция аналогична критериям перенапряжения, используемым для отказа с разрушением циркалоевой оболочки в условиях потери теплоносителя [21]. Разрушающее напряжение изменяется в зависимости от температуры и было определено на основе данных об отказах, полученных в результате недавно проведенных Мэсси и др. в ОРНЛ вне реакторных испытаний на разрушение FeCrAl оболочки [12]. Насколько нам известно, данные Мэсси и др. — это единственные имеющиеся в настоящее время экспериментальные данные о поведении FeCrAl оболочки при отказе с разрывом в условиях LOCA. На основе результатов измерений давления в трубках данные в [12] были приведены в виде окружного напряжения при температуре возникновения отказа с разрывом. С использованием метода наименьших квадратов в [14] была проведена наилучшая подгонка к данным с целью получения корреляции для (окружного) разрушающего напряжения в виде экспоненциальной функции температуры. Было также отмечено, что при низких температурах ППР является консервативным критерием отказа. Поэтому полученная корреляция для разрушающего напряжения σ_{burst} (в МПа) приводится в [14] в виде:

$$\sigma_{burst} = \begin{cases} UTS & \text{for } T \leq 797 \text{ K} \\ 28441 \exp(-0,005588 T) & \text{for } T > 797 \text{ K} \end{cases} \quad (9)$$

где

UTS предел прочности на растяжение (ППР) (в МПа);

T температура (в К).

Экспоненциальное уменьшение разрушающего напряжения при повышении температуры соответствует функциональной форме Эрбахера и др. для циркаловых оболочек [21] (без учета эффекта содержания кислорода). Следует отметить, что экспериментальные данные о разрушении из [12], на которых основан критерий, были получены в результате испытаний в ОРНЛ труб оболочки из FeCrAl первого поколения, тогда как C35M является сплавом второго поколения. Ожидается, что сплавы первого поколения окажутся менее стойкими, чем C35M [9]. Однако в отсутствие конкретных данных о поведении C35M при разрушении, описанный выше критерий разрушения, как ожидается, обеспечит для C35M консервативные прогнозы относительно отказа с разрывом в условиях LOCA.

2.2. Топливо на основе U_3Si_2

Основным преимуществом топлива на основе U_3Si_2 по сравнению с топливом на основе UO_2 является более высокая теплопроводность. Теплопроводность UO_2 составляет $\sim 2-5 \text{ Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$, а теплопроводность U_3Si_2 — $\sim 15-30 \text{ Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$. Эта большая разница приводит к снижению уровней температуры топлива на осевой линии и градиентов температуры в топливных таблетках. Это, в свою очередь, может уменьшить растрескивание таблеток и выход из топлива газообразных продуктов деления. Кроме того, высокая ураноемкость U_3Si_2 ($11,3 \text{ гU}/\text{см}^3$ по сравнению с $9,7 \text{ гU}/\text{см}^3$ для UO_2 [22]) экономически привлекательна, так как она может обеспечить более глубокое выгорание и большую длительность топливной кампании.

Имеющиеся на сегодня данные показывают, что U_3Si_2 более склонен к химической реакции, чем UO_2 . Например, Харп и др. [23] сообщили о «слоистой структуре продуктов коррозии» на поверхности U_3Si_2 , контактировавшего с водой при 300°C в течение периодов до 24 часов. Кроме того, авторы сообщили о взаимной диффузии U_3Si_2 и циркалоя в ходе испытаний при температуре 800°C в течение 100 часов. Присутствуют также фазы Fe и Cr, сформировавшиеся на поверхности раздела, с областями, богатыми $ZrSi_2$ и U, в циркалое. Авторы указывали, что необходимы дальнейшие исследования, но ясно, что U_3Si_2 более активен, чем UO_2 .

Окисление U_3Si_2 было исследовано, например, в [24–26]. В частности, Вуд и др. [24] исследовали возможность повышения стойкости U_3Si_2 к окислению и показали, что стойкость к окислению в воздухе при 400°C улучшилась при добавлении алюминия. Однако любой легирующий элемент снижает объемное содержание урана, уменьшая преимущество высокой ураноемкости топлива.

К другим потенциальным недостаткам U_3Si_2 как материала топлива относятся низкая температура плавления (~ 1938 К) и возможное значительное газовое распухание. Финли и др. [27] сообщали о значительном газовом распухании U_3Si_2 при облучении. Однако они приписывали интенсивное распухание переходу из кристаллического состояния в аморфное. Этот переход не может происходить при температурах, типичных для энергетического реактора, и поэтому распухание может оказаться значительно меньшим, чем предполагалось первоначально. Сделанные Шимицу [28] в 1965 году микрофотографии U_3Si_2 , облученного при температурах энергетического реактора, показывали, что материал сохранял поликристаллическую структуру. На основе анализа микрофотографий можно было предполагать [29] большую степень газового распухания, порядка 10% при выгорании 6 ГВт·сут/тU, что соответствует данным измерений изменения плотности топлива, приведенным в первоначальном докладе об эксперименте [28].

Однако проведенное недавно экспериментальное облучение на усовершенствованном испытательном реакторе (УИР) в Айдахской национальной лаборатории свидетельствует о том, что имели место весьма малые газовое разбухание и выход газообразных продуктов деления, по крайней мере, при достигнутом к настоящему времени низком выгорании (< 20 ГВт·сут/тU) [30]. Образование пузырьков газообразных продуктов деления, фиксируемых при оптической микроскопии, происходило от центра топливной таблетки наружу до приблизительно 60% радиуса таблетки. Другие результаты послереакторного исследования, полученные в ходе этого недавнего эксперимента, включают ограниченное растрескивание по сравнению с ожидаемым поведением UO_2 при том же уровне мощности. Кроме того, данные гамма-сканирования не выявили миграции продуктов деления. Было измерено [30] незначительное однородное упрочнение по радиусу таблетки вследствие накопления продуктов деления и радиационного повреждения. Еще предстоит осуществить масштабирование процесса для обеспечения топливом целых сборок и реакторов, и необходимо решить определенные проблемы [26].

В данном разделе приводится краткое описание основных свойств U_3Si_2 как материала, полученных из имеющейся литературы, включая теплофизические свойства, механические свойства и распухание. Более подробный обзор содержится в [31].

2.2.1. Удельная теплоемкость

Что касается удельной теплоемкости U_3Si_2 , то на основе данных Уайта [22], а также данных Кнаке и др. [32], в [31] было сообщено о следующей эмпирически подобранной функции:

$$c_p = 141 + 0,02582 \times 10^{-2} T \quad (10)$$

где

c_p удельная теплоемкость (Дж·моль⁻¹·К⁻¹);
 T температура (К).

2.2.2. Теплопроводность

Эмпирическая модель теплопроводности для U_3Si_2 , основанная на экспериментах Уайта и др. [33], описывается выражением

$$k = 4,996 + 0,0118 T \quad (11)$$

где

k теплопроводность (Вт/м·К);
 T температура (К).

Данная модель действительна для $300 < T < 1773$ К.

В качестве альтернативы, на основе экспериментальных данных Уайта [22], Шимизу [28], Мохамеда [34] и Антонио [35], в [31] было сообщено о следующем эмпирическом полиноме, описывающем теплопроводность U_3Si_2 :

$$k = 9,029 \times 10^{-15} T^5 - 4,609 \times 10^{-11} T^4 + 8,676 \times 10^{-8} T^3 - 7,485 \times 10^{-5} T^2 + 4,166 \times 10^{-2} T + 0,5211 \quad (12)$$

Уравнение (12) применимо для $13 < T < 1500$ К [31].

2.2.3. Температуропроводность

На основе данных Уайта и др. [22] и Мохамеда [34] в [31] было сообщено о следующей подобранной функции для температуропроводности U_3Si_2 :

$$\alpha = -9,899 \times 10^{-7} T^2 + 5,797 \times 10^{-3} T + 1,603 \quad (13)$$

где α – температуропроводность (mm^2/c).

2.2.4. Коэффициент теплового расширения

В литературе имеется ряд данных о коэффициенте линейного теплового расширения U_3Si_2 . Здесь мы ссылаемся на работу Уайта и др. [22], которые определяли в dilatометре свойства полученных спеканием в инертных атмосферах прессованных пластинок в температурном диапазоне от 273 до 1673 К и сообщивших о постоянном значении коэффициента теплового расширения, равном $16,1 \times 10^{-6} \pm 1,3 \times 10^{-6} K^{-1}$.

2.2.5. Модуль Юнга и коэффициент Пуассона

Шимизу определял модуль Юнга U_3Si_2 на выплавленных в дуговой печи образцах с помощью испытаний на сжатие и получил среднее значение 96 ГПа ± 40 ГПа [28]. Тейлор и Макмертри [36], используя акустический метод, определили на полученных спеканием брусках U_3Si_2 значение, равное 125 ГПа ± 4 ГПа. Оно согласуется с значением, полученным Шимизу, но имеет гораздо более высокую погрешность. Эти данные были представлены в [31].

Сообщалось также, что значение коэффициента Пуассона для полученных спеканием таблеток U_3Si_2 составляет $0,183 \pm 0,003$ [37], а для таблеток, полученных методом искрового плазменного спекания, – $0,2 \pm 0,1$ [34]. Все значения в целом согласуются между собой, но в [31] было рекомендовано значение, равное $0,184$.

2.2.6. Распухание

Первоначальная эмпирическая модель распухания U_3Si_2 была получена в [38]. Распухание частиц топлива было рассчитано Финли и др. [27] на основе результатов радиационных испытаний миниатюрных пластин. Для преобразования данных Финли (плотности деления) в FIMA (число делений на один исходный атом тяжелого металла) в качестве плотности тяжелого металла использовалось значение $10,735$ г/см³, эквивалентное 95% теоретической плотности тяжелого металла. По данным Финли, зависимость объемной деформации распухания от выгорания может быть описана следующей формулой:

$$\frac{\Delta V}{V} = 3,8808 \times bu^2 + 0,79811 \times bu \quad (14)$$

где

$\frac{\Delta V}{V}$ – объемная деформация (безразмерная);

bu – выгорание (FIMA).

Квадратное уравнение для суммарной объемной деформации затем разделяется на твердотельную и газовую компоненты. Используя данные Хофмана [39] и такую же процедуру перехода от плотности деления к выгоранию, получаем следующую корреляцию для твердотельной компоненты распухания:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{solid} = 0,34392 \times bu \quad (15)$$

После вычитания уравнения (15) из уравнения (14) получаем вклад газовой компоненты распухания, задаваемый следующей квадратичной функцией выгорания:

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{gaseous} = 3,8808 \times bu^2 + 0,45419 \times bu \quad (16)$$

В последнее время на основе теории скоростей и многоуровневых подходов разработаны физические модели газового распухания и выхода газообразных продуктов деления в U_3Si_2 [29, 40]. Тем не менее, для дальнейшей разработки и валидации моделей расчета газообразных продуктов деления в U_3Si_2 необходимы экспериментальные данные по характеристикам пузырьков газообразных продуктов деления, распуханию и газовой выделению.

В числе других необходимых в настоящее время данных по топливу на основе U_3Si_2 мы упоминаем данные о внутриреакторном уплотнении топлива, а также о тепловой и радиационной ползучести.

2.3. Оболочка из SiC

При анализе поведения оболочки из SiC необходимо учитывать следующие наиболее важные свойства: теплопроводность, модуль упругости, модуль сдвига, коэффициент Пуассона, твердость, тепловое расширение, ползучесть, распухание, прочность на излом, излучательную способность, коррозию, накопление продуктов коррозии, плотность, температуру разложения и т.д. На эти свойства оказывают сильное влияние процесс изготовления и строение керамического матричного композитного материала SiC. На основе имеющихся данных, сведений справочников по материалам для SiC и трех технических докладов КНИИЯЭТ, КИАЭ и КЯЭИ ниже приводится краткое описание свойств SiC.

2.3.1. Удельная теплоемкость

Удельная теплоемкость SiC_f/SiC в значительной степени зависит от температуры и имеет незначительный уровень чувствительности к нейтронному облучению. При температуре выше 200 К удельная теплоемкость медленно возрастает с температурой, а формула для диапазона от 200 до 2400 К, по данным доклада КИАЭ, может выглядеть следующим образом:

$$C_p = 925,65 + 0,3772T - 7,9259 \times 10^{-5}T^3 - 3,1946 \times 10^7T^2 \quad (17)$$

(200 < T < 2400 К)

где

C_p удельная теплоемкость (Дж/кг·К);
 T температура (К).

Рекомендуемые значения погрешности составляют $\pm 7\%$ ($200 \leq T \leq 1000$ К) и $\pm 4\%$ ($1000 \leq T \leq 2400$ К).

2.3.2. Теплопроводность

Теплопроводность композитного материала на основе SiC зависит от температуры и от флюенса быстрых нейтронов. Формула температурной зависимости теплопроводности SiC была основана на данных измерений композитных материалов на основе SiC и повреждений кристаллической решетки в результате смещения атомов (измеренных в с.н.а. с использованием коэффициента преобразования 1×10^{25} нейтронов/см² = 1 с.н.а. [179–181]). Была разработана эмпирическая формула зависимости теплопроводности от температуры и с.н.а. [177],

$$k_{clad} = k_{sat} \left(\frac{(d+d_0)}{d_{sat}} \right)^{-0,4} \quad (18)$$

где

d суммарное значение с.н.а. оболочки;
 d_0 эффективное значение с.н.а. для $k(T) > k_{sat}$,

которая представляет собой теплопроводность оболочки по достижении значения с.н.а., соответствующего насыщению. Независимо от температуры предполагается, что в данной модели при значениях, превышающих 1 с.н.а., насыщение теплопроводности происходит на уровне 4 Вт/м·К. Коэффициент эффективного значения с.н.а. должен учитывать влияние температуры,

$$d_0 = d_{sat} \left(\frac{k_{sat}}{k(T)} \right)^{2,5} \quad (19)$$

При уровнях ниже радиационного насыщения температурная зависимость для оболочки задается соотношением

$$k(T) = 8 \times 10^{-6} T_{clad}^2 - 0,02 T_{clad} + (k_{rt} + 46,4) \quad (20)$$

где

k_{rt} теплопроводность оболочки при комнатной температуре (300 К) и 0 с.н.а.;
 T температура оболочки в актуальной точке геометрической сетки (К).

В ходе облучения происходит незначительное изменение теплопроводности при изменении температуры. Это говорит о том, что после достижения значения с.н.а., соответствующего насыщению, значение теплопроводности, соответствующее насыщению, является постоянным.

В КИАЭ были использованы другая ссылка и формулы. Теплопроводность SiC_f/SiC можно описать как гармоническое среднее значение теплопроводности в отсутствие облучения $K_{non-irr}$ и величину, обратную устойчивости к термическим дефектам $1/K_{rd}$. Теплопроводность в отсутствие облучения теоретически выражается как функция $[A+BT]^{-1}$ с константами А и В. Устойчивость к термическим дефектам отражает линейную зависимость в нижнем диапазоне доз быстрых нейтронов и насыщение после достижения порогового флюенса нейтронов, поэтому формула может иметь аналогичный вид (относительно дозы) [175].

$$\frac{1}{K_{irr}} = \frac{1}{K_{non-irr}} + \frac{1}{K_{rd}} \quad (21)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{K_{non-irr}} = 36,262 \times 10^{-3} + 15,256 \times 10^{-6} T \\ \frac{1}{K_{rd}} = 52,632 \times 10^{-3} + 35,582 \times 10^{-3} D \end{array} \right. \quad (22)$$

где

K_{irr} теплопроводность ($Вт \cdot м^{-1} \cdot К^{-1}$);
 T температура (К);
 D повреждение кристаллической решетки в результате смещения атомов (с.н.а.), связанное с флюенсом нейтронов коэффициентом преобразования 1×10^{25} нейтронов/ $м^2 = 1$ с.н.а. [179–181].
 В КЯЭИ используется следующая формула зависимости теплопроводности от температуры

$$k_{SiC} = \frac{17885}{T} + 2 \quad (23)$$

2.3.3. Коэффициент излучения

На основе имеющихся данных о композитах постоянное значение коэффициента излучения оболочки 0,8 ($\varepsilon = 0,8$) было получено из отдельного доклада КНИИЯЭТ

В КИАЭ использовались другие справочные данные о зависимости коэффициента излучения поверхности от температуры. Коэффициент излучения поверхности SiC_f почти не изменяется при изменении флюенса нейтронов и линейно интерполируется от 0,82 при 1400 К до 0,92 при 1100 К; он задается выражением

$$E_{mit} = \begin{cases} 0,92, & T < 1100K \\ 1,287 - 0,333 \times 10^{-3} T, & 1100 \leq T \leq 1400K \\ 0,82, & T > 1400K \end{cases} \quad (24)$$

где

E_{mit} коэффициент излучения (безразмерный);
 T температура (К).

В КЯЭИ ввиду различий в изготовлении и химических компонентах используется другая модель теплопроводности для слоя SiC и матрицы SiC. Кроме того, Si и C обладают похожими

электроотрицательными свойствами; поэтому в соответствии с принципом выравнивания электроотрицательностей SiC в основном состоит из C и Si с ковалентной связью. Формула термического сопротивления SiC может быть упрощена согласно приведенному ниже уравнению, если пренебречь вкладом электронов в теплопроводность при высоких температурах.

$$\frac{1}{k} = R_m + R_{gb} + R_u + R_{id} \quad (25)$$

где

k теплопроводность ($\text{Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$);

R термическое сопротивление ($\text{К}/\text{Вт}$);

а индексы m, gb, u, id соответственно обозначают матрицу, границу зерен, рассеяние фононов и облучение.

Компоненты матрицы, границы зерен и рассеяния фононов не связаны с облучением, но зависят от температуры. Соответственно, уравнение можно дополнительно упростить следующим образом:

$$\frac{1}{k} = R_0 + R_{irr} \quad (26)$$

где R_0 и R_{irr} — термическое сопротивление ($\text{К}/\text{Вт}$) SiC до и после облучения, соответственно.

Термическое сопротивление (R_0) матрицы SiC до облучения задается следующим выражением:

$$R = \frac{1}{-3,7 \times 10^{-8} T^3 + 1,54 \times 10^{-4} T^2 - 0,214 T + 153,1} \quad (27)$$

Термическое сопротивление, индуцированное облучением (R_{irr}), выражается следующим образом:

$$R_{irr} = \frac{1}{6,08 \cdot S} \quad (28)$$

2.3.4. Объемное тепловое расширение

Согласно опубликованным данным, по сравнению с чистым SiC коэффициент линейного теплового расширения композитных материалов на основе SiC имеет слабую температурную зависимость, и, как правило, его значение находится в диапазоне от 2×10^{-6} до $5 \times 10^{-6} \text{ К}^{-1}$. Не ясно, есть ли существенная разница между набуханием параллельно и перпендикулярно оси волокон, поэтому предполагалось, что коэффициент расширения одинаков во всех направлениях. Кроме того, ввиду отсутствия данных об изменении с температурой использовалось постоянное значение. Коэффициент теплового расширения оболочки из SiC задается равным $4 \times 10^{-6} \text{ К}^{-1}$ в соответствии с докладом КНИИЯЭТ (см. приложение).

В КИАЭ использовались другие справочные данные о зависимости линейного теплового расширения от температуры (см. приложение). Тепловое расширение выражается как функция температуры в температурном диапазоне от 293 до 1273 К, и облучение оказывает на него незначительное влияние

$$\alpha_L = -0,7765 + 1,435 \times 10^2 T - 1,2209 \times 10^5 T^2 + 3,8289 \times 10^9 T^3 \quad (29)$$

$$(293 \text{ К} < T < 1273 \text{ К})$$

где

α_L коэффициент линейного теплового расширения (К^{-1});

T температура (К).

В КЯЭИ использовалось следующее уравнение для зависимости коэффициента линейного теплового расширения SiC от температуры (см. приложение):

$$\alpha_L (\times 10^{-6}) = \begin{cases} -1,8267 + 0,0178 T - 1,5544 \times 10^{-5} T^2, & T > 1273 \text{ К} \\ + 4,5246 \times 10^{-9} T^3 & \\ 5,0 & , T < 1273 \text{ К} \end{cases} \quad (30)$$

где

α_L коэффициент линейного теплового расширения SiC (К^{-1});

T температура (К);

E_{SiC} модуль упругости SiC (Па);

k_{SiC} теплопроводность SiC ($\text{Вт}\cdot\text{м}^{-1}\cdot\text{К}^{-1}$).

2.3.5. Коэффициент упругости

Зависимость модуля Юнга от температуры была задана как линейная в соответствии с данными доклада КНИИЯЭТ,

$$E(T) = 4,6 \times 10^5 - 40 T \exp\left(\frac{-962}{T}\right) \quad (31)$$

где T указана в К, а E в МПа, что, как ожидается, справедливо для композитов в области типичной температуры оболочки, равной 600 К.

Также ожидается, что модуль может немного уменьшиться при облучении. При использовании консервативного среднего значения для поведения предполагается, что модуль Юнга экспоненциально уменьшается и после 20 с.н.а. достигает насыщения на уровне 40% значения в отсутствие облучения. Формула, основанная на этом предположении, имеет вид

$$E(T, f) = E(T) \left(1 - 0,4 \left(1 - \exp\left(-\frac{3f}{20}\right)\right)\right) \quad (32)$$

Значение коэффициента Пуассона, используемое для SiC/SiC, составляет $\nu = 0,13$.

Модуль сдвига рассчитывается по формуле

$$G = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (33)$$

где

G модуль сдвига;

E модуль Юнга;

ν коэффициент Пуассона.

В КИАЭ использовались другие справочные данные по модулю упругости композитов. Композиты продемонстрировали превосходную устойчивость к облучению, 15–20%-ное снижение модуля упругости по сравнению с его значением в необлученном состоянии после воздействия с параметрами 12 с.н.а. при 750°C. Согласно справочным данным, модуль Юнга снижается на 35% при изменении температуры от комнатной до 1400°C. С использованием этих данных его формулу можно записать в виде

$$E_0 = 212 \times (-1,7578 \times 10^{-7} T^2 + 1,7676 \times 10^{-4} T + 1,0) \quad (34)$$

$$E_{irr} = E_0 \left(0,7158 + \frac{1}{D+3,5322}\right) \quad (35)$$

где

E_0 модуль упругости в отсутствие облучения (ГПа);

E_{irr} модуль упругости после облучения (ГПа);

T температура (К);

D повреждение кристаллической решетки в результате смещения атомов, измеренное в с.н.а. и связанное с флюенсом нейтронов коэффициентом преобразования 1×10^{25} нейтронов/м² = 1 с.н.а. [179–181].

В КЯЭИ использовались другие справочные данные по модулю упругости. При расчетах учитываются свойства слоя SiC, матрицы SiC и уплотняющих PyC (пироуглеродных) материалов. Модуль упругости PyC слоя является анизотропным и может быть рассчитан по следующей формуле:

$$E_{PyC} = 25,5(0,384 + 0,000324\rho_{PyC})(0,481 + 0,519 \cdot \text{BAF}) \times (1 + 0,23\Phi)(0,9560275 + 0,00015T) \quad (36)$$

где:

Φ поток быстрых нейтронов;

BAF параметр анизотропии (безразмерный);

T температура.

Модуль упругости слоя SiC описывается следующими уравнениями:

$$E_{SiC} = 460 - 0,04T \exp\left(-\frac{962}{T}\right) \quad (37)$$

2.3.6. Ползучесть

Согласно докладу КНИИЯЭТ, при температурах ниже 1000 К ползучесть SiC пренебрежимо мала.

2.3.7. Предел текучести

Предел текучести SiC/SiC зависит как от температуры, так и от флюенса быстрых нейтронов. По данным КНИИЯЭТ, температурная зависимость предела текучести композитных материалов на основе SiC моделируется формулой

$$\sigma_u(T) = 2,66 \times 10^4 T + 2 \times 10^8 \quad (38)$$

где T задается в Кельвинах, а σ_u – в МПа. Для хрупких материалов предел текучести очень близок к пределу прочности, так как они практически не испытывают пластической деформации перед разрушением. Для простоты предел прочности оболочки задается таким же, как предел текучести. Кроме того, деформации при воздействии нагрузки и при отказе определяются с использованием модуля Янга и, соответственно, предела текучести и предела прочности.

В сочетании с эффектом облучения модель включает в себя экспоненциальную функцию, которая выходит на насыщение при 40%-ном снижении температурно зависимых предела прочности на растяжение и прочности,

$$\sigma_u(T, f) = \sigma_u(T) \left[1 - 0,4 \left(1 - \exp\left(-\frac{3f}{20}\right) \right) \right] \quad (39)$$

где f задается в с.н.а.

2.3.8. Радиационное распухание

Ввиду ограниченности доступной информации о композитных материалах на основе SiC, использующих фибры Hi-Nicalon типа S, предполагается, что при облучении они подвержены распуханию, экспоненциально приближающемуся к значению при насыщении $2 v/o$. На основе этой модели, после 1 с.н.а. распухание достигло 95% значения при насыщении. Кроме того, предполагается, что это распухание демонстрирует одинаковое поведение в плоскости и по толщине композитного материала, а максимальная линейная деформация, вызванная облучением, составляет 0,67%. Тогда эта линейная деформация задается следующим ниже уравнением, согласно докладу КНИИЯЭТ [177],

$$c(f) = 0,67(1 - \exp(-3f)) \quad (40)$$

где f задается в с.н.а.

В отличие от циркалоя, SiC сохраняет прочность и не подвержен ползучести до 1300°C, и он стабилен при облучении.

Модель распухания матрицы из SiC и оболочки из SiC включает зависимость от температуры и потока быстрых нейтронов, которую можно записать следующим образом:

$$S = k_s \gamma^{-1/3} \exp\left(-\frac{\gamma}{\gamma_{sc}}\right) \quad (41)$$

где

S уровень распухания (%);

k_s коэффициент уровня распухания (с. н. а. $^{-2/3}$);

γ доза нейтронного облучения (с. н. а.);

γ_{sc} типичная доза при насыщении распухания в результате воздействия механизма отрицательной обратной связи (с. н. а.).

Значение распухания SiC можно получить путем интегрирования по времени приведенного ниже уравнения.

$$S = S_s \left[1 - \exp\left(-\frac{\gamma}{\gamma_{sc}}\right) \right]^{2/3} \quad (42)$$

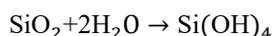
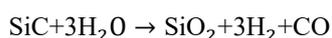
где S_s и γ_{sc} зависят от температуры и могут быть выражены следующими ниже формулами:

$$S_s(T) = 0,05837 - 1,0089 \times 10^{-4}T + 6,9368 \times 10^{-8}T^2 - 1,8152 \times 10^{-11}T^3 \quad (43)$$

$$\gamma_{sc}(dpa) = -0,4603 + 2,6674 \times 10^{-3}T - 4,3176 \times 10^{-6}T^2 + 2,3803 \times 10^{-9}T^3 \quad (44)$$

2.3.9. Окисление

При воздействии пара на SiC происходят две следующие химические реакции:



Потенциальное тепловыделение этих реакций установлено соответственно на уровнях 360 кДж/моль и 40 кДж/моль. Продуктом окисления SiC является SiO₂. Толщина SiO₂ определяется следующим уравнением [176],

$$\frac{dx}{dt} = \frac{\alpha^2 k_p}{2\rho^2 x} - \frac{k_l}{\rho} \quad (45)$$

где

$$\alpha \quad \text{MSiO}_2/(\text{MO}_2 - \text{MC}) = 60/(32 - 12) = 3;$$

$$\rho \quad \text{плотность SiO}_2 \text{ (кг/м}^3\text{);}$$

$$k_p \quad \text{константа параболической скорости (кг·м}^{-2}\text{·с}^{-1}\text{);}$$

$$k_l \quad \text{константа линейной скорости (кг·м}^{-2}\text{·с}^{-1}\text{);}$$

Увеличение толщины оксидного слоя описывается параболической кинетической моделью, а уменьшение толщины оксидного слоя описывается линейной кинетической моделью. Итоговое изменение массы оксидного слоя на единицу поверхности (кг/м²) задается формулой:

$$\Delta w_{\text{net}} = \frac{\alpha k_p}{2k_l} \left[1 + W \left(-\exp\left(\frac{-2k_l^2 t}{\alpha^2 k_p} - 1\right) \right) \right] - k_l t \quad (46)$$

В правой части уравнения первым членом является приращение, связанное с окислением; вторым членом является убыль веса вследствие реакции SiO₂ с паром. W Представляет собой W-функцию Ламберта.

Для того, чтобы устранить неопределенность, связанную с среднеквадратичной ошибкой при подгонке, мы выбрали точки из опубликованных данных [178], с тем чтобы снова выполнить подгонку с $R=8,314$ Дж/(моль·К) и преобразованием единиц измерения, и были получены следующие уравнения

$$k_p = 8,6008 \times 10^{-8} \exp\left(-\frac{238000}{8,314T}\right) P \quad (47)$$

$$k_l = 4,5728 \times 10^{-13} \exp\left(-\frac{159000}{8,314T}\right) P^{1,74} v^{0,69} \quad (48)$$

где

$$P \quad \text{давление (Па);}$$

$$v \quad \text{скорость потока пара (м/с);}$$

$$T \quad \text{температура оболочки (К).}$$

2.4. СПЛАВ 348

В таблице 7 представлены корреляции для свойств материала AISI 348.

ТАБЛИЦА 7. СВОЙСТВА МАТЕРИАЛА AISI 348

Свойство	Корреляция/значение для AISI 348
Плотность (10^3 кг/м ³)	7,94
Точка плавления (°C)	1400
Удельная теплоемкость (Дж/г·К)	$0,4424 + 0,0001482 T(K)$
Коэффициент излучения	0,8
Тепловое расширение (ГПа)	$221049 - 72,9 T(K)$
Теплопроводность (Вт/мм·К)	$(9,419 + 0,01538 T(K)) \times 10^{-3}$
Коэффициент Пуассона	$0,2616 + 7,2 \times 10^{-5} T(K)$
Предел текучести при растяжении (МПа)	$268,9 - 0,16 T(K)$
Предел прочности (МПа)	$-1,3152 T(^{\circ}C) + 954,3$ при $T(^{\circ}C) < 200^{\circ}C$ $-0,258 T(^{\circ}C) + 738,5$ при $200^{\circ}C < T(^{\circ}C) < 470^{\circ}C$ $-0,9192 T(^{\circ}C) + 1050,9$ при $T(^{\circ}C) > 470^{\circ}C$.

3. ДОКЛАД О КРУГОВОМ ИССЛЕДОВАНИИ В РАМКАХ АКТОФ

Мотивация, лежащая в основе работ по разработке оболочек ATF, основана на конкретных ограничениях, связанных с поведением циркониевых сплавов в сценариях проектных и запроектных аварий. Циркониевая оболочка, используемая в настоящее время во всех LWR, обеспечивает надлежащие характеристики материала и при этом является относительно прозрачной для нейтронов, образующихся в активной зоне реактора. Однако высокотемпературное взаимодействие Zr с паром, происходящее с интенсивным выделением тепла и сопровождаемое выделением водорода, является одним из основных факторов, обуславливающих серьезное повреждение активной зоны и выброс продуктов деления в запроектных условиях (DEC) работы ядерного реактора.

В качестве замены современных материалов оболочки на основе циркония предлагается несколько возможных решений, таких как улучшенные сплавы на основе Zr, сплав FeCrAl, сплавы на основе Mo, композитные материалы на основе SiC, различные покрытия и модифицированные топливные таблетки [1, 42–47]. При разработке новых материалов оболочки необходимо понимать механизмы их повреждения как в нормальных условиях эксплуатации, так и в аварийных условиях, т.е. поведение при окислении и механические свойства в нормальных условиях эксплуатации, а также в сценариях с потерей теплоносителя и в условиях воздействия высокотемпературного пара.

За последние несколько десятилетий были разработаны стандартные методы и процедуры испытания циркониевых сплавов. Однако эти методы и стандарты могут быть неприменимы в отношении усовершенствованных материалов-кандидатов на использование в ATF. По этой причине во время второго СКИ в рамках ПКИ АКТОФ было предложено провести круговое исследование материалов-кандидатов на использование в оболочке ATF. Основные цели заключались в следующем:

- провести испытания четырех различных материалов-кандидатов на использование в оболочке ATF от четырех различных учреждений;
- изучить коррозионное поведение материалов оболочки ATF в типичных условиях LWR;
- изучить стойкость к окислению в атмосфере высокотемпературного водяного пара в условиях, связанных с LOCA;
- провести сопоставление методов, процедур и стандартов, используемых в различных лабораториях;
- провести валидацию современных методов испытаний материалов ATF;
- дать оценку материалам-кандидатам на использование в оболочке ATF на основе двух проведенных фундаментальных испытаний.

3.1. КРУГОВОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ: ЦЕЛИ И МОТИВАЦИЯ

Испытанные материалы отражали три концепции оболочки с покрытием, а один представлял собой нержавеющую сталь марки AISI. Были определены два основных испытания: испытание на высокотемпературное окисление в атмосфере водяного пара и испытание на длительную коррозию. В ходе испытания на высокотемпературное окисление в атмосфере водяного пара было необходимо изучить и количественно оценить поведение в аварийных условиях материалов-кандидатов на использование в ATF, в то время как в ходе испытания на длительную коррозию основное внимание уделялось условиям нормальной эксплуатации LWR. Участниками кругового исследования (КИ) были: Чешский технический университет/компания «UJF Praha» (ЧТУ(СТУ)), Технологический институт Карлсруэ (ТИК(КИТ)), Институт ядерной химии и технологии (ИЯХТ(ИНСТ)), Технический исследовательский центр Финляндии (VTT), Университет Сан-Паулу (УСП(USP)) и Центр энергетических исследований Академии наук Венгрии (МТА ЕК). Работы в рамках КИ были связаны с решением трех подзадач:

- изготовление образцов оболочки ATF;
- испытания на длительную коррозию в условиях ВХР ВВЭР или PWR;
- высокотемпературное окисление.

Участие сторон в решении конкретных подзадач в рамках работ по проведению КИ отражено в таблице 8.

ТАБЛИЦА 8. ВКЛАДЫ УЧАСТНИКОВ ПКИ В РЕШЕНИЕ ПОДЗАДАЧ КИ

	ЧТУ	ТИК	ИЯХТ	VTТ	УСП	МТА ЕК
Изготовление образцов	X	X	X	—	X	—
Испытания на длительную коррозию	X	—	X	X	—	—
Высокотемпературное окисление	X	X	—	X	—	X

Как видно из таблицы 8, в четырех учреждениях были изготовлены образцы оболочки ATF четырех различных типов. Три учреждения провели испытания на длительную коррозию в условиях ВХР PWR или ВВЭР, а испытание на высокотемпературное окисление провели четыре учреждения.

Были предоставлены следующие материалы-кандидаты на использование в оболочке ATF:

- от ТИК – Zry-4 с PVD (осаждение из паровой фазы) покрытием МАХ-фаза (толщины слоя 1,5 мкм (Cr), 4,5 мкм (Cr₂AlC) и 0,5 мкм (Cr));
- от ЧТУ – Zry-2 и Zr1%Nb с PVD Cr покрытием (толщиной ~26 мкм и ~15 мкм);
- от ИЯХТ – Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием (~2,5 мкм);
- от УСП – улучшенная нержавеющая сталь (марки AISI 348).

Номинальные композиции материалов подложки и нержавеющей стали марки AISI 348 таковы (в массовых процентах):

- Zry-2 LK3 (1,5Sn; 0,12Fe; 0,1Cr; 0,12O; 0,05Ni);
- Zry-4 (1,5Sn; 0,20Fe; 0,1Cr; 0,09-0,13O);
- Нержавеющая сталь марки AISI 348 (17,5Cr; 11Ni; 1,7Mn; 0,41Si; 0,85Nb).

В соответствии с требованиями участников были подготовлены образцы для испытаний, имеющие различную геометрическую форму. Как можно видеть, во всех трех вариантах оболочек с покрытием использовались различные материалы разной толщины. Следует отметить, что некоторые первоначально запланированные испытания не были завершены ввиду нехватки времени и материалов.

3.2. ИЗГОТОВЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ

Варианты материалов оболочки с покрытием для использования в ATF, как ожидается, будут выдерживать потерю теплоносителя во время ядерной аварии в течение значительно более длительного времени, чем оболочка из циркониевого сплава без покрытия. В данном ПКИ в качестве подложки для покрытий из Cr и ZrSi-Cr, осажденных методом PVD, использовался циркалой-2. Циркалой-4 (Zry-4) использовался в качестве подложки для оболочек с покрытием из МАХ-фазы (Cr/Cr₂ALC/Cr), осажденным методом PVD. Кроме того, был исследована нержавеющая сталь марки AISI 348, произведенная и предоставленная Бразильским университетом Сан-Паулу. Изготовление образцов-кандидатов для использования в оболочке ATF описано ниже в настоящей главе, а также в приложении.

3.2.1. Бразильский УСП: Нержавеющая сталь марки AISI 348

Были предоставлены образцы из аустенитной нержавеющей стали (марки AISI 348) двух различных геометрических форм: трубки и пластины. Состав и свойства материалов обоих типов образцов (трубок и пластин) были одинаковыми и приведены ниже:

- химический состав: Fe-основная часть, С-0,055%, Мн-1,70%, Р-0,017%, S-0,003%, Si-0,41%, Cr-17,5%, Ni-11%, Nb-0,85%, N-0,0018%, Co-0,021%, Та<0,005%, В-0,0008%;
- микротвердость: 150–200 по Виккерсу;
- шероховатость поверхности: ≤ 0,7 мкм Ra;
- механические свойства при 20°C: предел прочности на растяжение — 640 МПа, предел текучести — 330 МПа, удлинение 50 мм образца — 47%;
- механические свойства при 370°C: предел прочности на растяжение — 455 МПа, предел текучести — 260 МПа, удлинение 50 мм образца — 26%;

- неметаллические включения (стандарт ASTM E45, [48]): ≤ 1 ;
- оценка карбидов ниобия (стандарт ASTM E407 [49]): непрерывные нестабилизированные зоны с эквивалентным диаметром $< 0,05$ мм;
- межкристаллитная коррозия (стандарт ASTM A262, методика А [50]): материал не имеет межкристаллитных трещин (увеличение в диапазоне от $5\times$ до $20\times$).

Средний размер зерна (по классификации стандарта ASTM E112 [51]) составлял от 8 до 9 у образцов в форме трубок и менее 7 у образцов в форме пластин. Образцы в форме пластин были изготовлены из стержней из стали AISI 348 диаметром 22 мм. После обработки каждый образец в форме пластины был отполирован, промаркирован и очищен. Трубочатые образцы были подготовлены путем резки длинных трубок из стали AISI 348 диаметром 9,8 мм и толщиной стенки 0,6 мм. После резки каждый образец в форме трубки был маркирован и очищен.

3.2.2. ЧТУ/UJP, Чешская Республика: PVD Cr покрытия

В качестве материалов подложки и эталонных материалов использовались стандартные листы цирколя-2 (Zry-2) LK3 (Sn-1,3 масс.%; Fe+Cr+Ni-0,26-0,38 масс.%; остальное-Zr) и трубки из Zry-2. Небольшие пластинки размером 2×2 см были обработаны, очищены и покрыты чистым Cr и подготовлены в соответствии с первоначальным планом (см. рис. 1). Позднее были подготовлены пластинки размером 1×2 см с Cr покрытием на основе требований VTT во второй партии осаждения Cr. Данные образцов, предоставленных другим участникам КИ, приведены в таблице 9. Чертежи первоначально определенной геометрической формы показаны на рис. 1 (слева), обработанные и полированные пластинки из Zry-2 перед осаждением методом PVD в ЧТУ показаны на рис. 1 (справа). Кроме того, были проведены испытания трубочатых образцов. Трубочатые образцы были испытаны только двумя участниками (ЧТУ/UJP и МТА ЕК). В качестве подложки в этих испытаниях использовался в основном сплав Zr1%Nb, предоставленный компанией «UJP Praha», а покрытие из чистого Cr было нанесено на поверхность образцов таким же методом.

ТАБЛИЦА 9. ОБРАЗЦЫ, ПРЕДОСТАВЛЕННЫЕ ЧТУ УЧАСТНИКАМ КИ В РАМКАХ АКТОФ

Испытания на длительную коррозию, VTT	Испытания на длительную коррозию, ИЯХТ	Высокотемпературное окисление — ТИК	Высокотемпературное окисление — VTT	Испытания на длительную коррозию, ЧТУ/UJP	Высокотемпературное окисление — ЧТУ/UJP	Высокотемпературное окисление — МТА
3 — 2×2 см пластинки из Zry-2 с Cr покрытием; 1 — из Zry-2 без покрытия	3 — пластинки 2×2 см из Zry-2 с Cr покрытием; 1 — 2×2 см из Zry-2 без покрытия	3 — пластинки 2×2 см из Zry-2 с Cr покрытием; 1 — 2×2 см из Zry-2 без покрытия	3 — пластинки 2×2 см из Zry-2 с Cr покрытием; 2 — 2×2 см из Zry-2 без покрытия; 4 — 2×1 см из Zry-2 с Cr покрытием	3 — пластинки 2×2 см из Zry-2 с Cr покрытием; 1 — 2×2 см из Zry-2 без покрытия	3 — 2×2 см пластины из Zry-2 с Cr покрытием; 1 — без покрытия, 2×2 см, из Zry-2; 3 — трубки из Zry-2 с Cr покрытием; 1 — из Zry-2 без покрытия	6 — из Zr1%Nb, длина 6 см, с Cr покрытием; 2 — из Zr1%Nb без покрытия

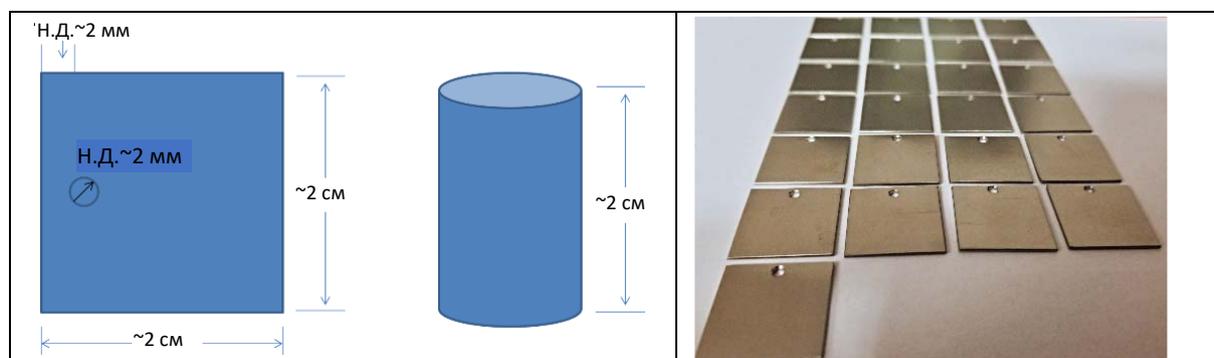


РИС. 1. Исходная геометрическая форма образцов, которыми обменивались учреждения в рамках КИ (слева); вырезанные и отполированные пластинки из Zry-2 перед осаждением методом PVD (справа).

На две партии Zr образцов было нанесено Cr покрытие с использованием метода несбалансированного магнетронного (UBM) распыления в промышленной системе «Hauzer Flexicoat 850». UBM — это особый тип распыления с расширенным объемом и повышенной плотностью плазмы с использованием катушек в несбалансированном замкнутом магнитном поле. Изображения системы, камеры для осаждения и вращающихся держателей образцов с Cr мишенью показаны на рис. 2. Перед осаждением Zr образцы были подвергнуты ультразвуковой очистке в ацетоне и высушены с помощью воздуходувки. Образцы были помещены в вакуумную камеру на поворотном столе с 3-осевыми вращающимися держателями, а скорость вращения стола была установлена равной 2 об/мин. Затем поверхности были очищены ионным травлением в аргоновой плазме в течение примерно 20 минут, с тем чтобы удалить тонкую оксидную поверхностную пленку и другие загрязнения.



Рис. 2. Фотографии установки «Hauzer Flexicoat 850» в ЧТУ в Праге. Общий вид системы (слева); камера для осаждения (в центре); вращающиеся держатели образцов с Cr мишенью на заднем плане (справа) (воспроизводятся с разрешения компании «Эльсевир»[182]).

Распыление производилось в режиме постоянного тока с использованием двух катодов с Cr (99,6 %) мишенями. В зависимости от стадии процесса на катоды подавалась мощность 6 или 3 кВт. На образцы подавалось отрицательное смещение 75 В постоянного тока. Рабочее давление составляло 0,2 Па, температура осаждения — 250°C, а ток на наружных катушках UBM — 2 А. Осаждение покрытий проводилось в режиме «металл» с расходом газообразного Ar (99,999 %) 90 куб.см/мин в течение примерно 18 часов. Толщина покрытий измерялась на приборе «Calotest» (компания «CSM», Швейцария) и составляла $26 \pm 0,1$ мкм в первой партии и $16 \pm 0,1$ мкм во второй партии. Результаты измерений на приборе «Calotest» для Cr покрытия из второй партии показаны на рис. 3. Более подробная информация о процессе изготовления PVD Cr покрытий на подложках на основе Zr содержится в докладе TECDOC ЧТУ, а также в [52, 54, 55].

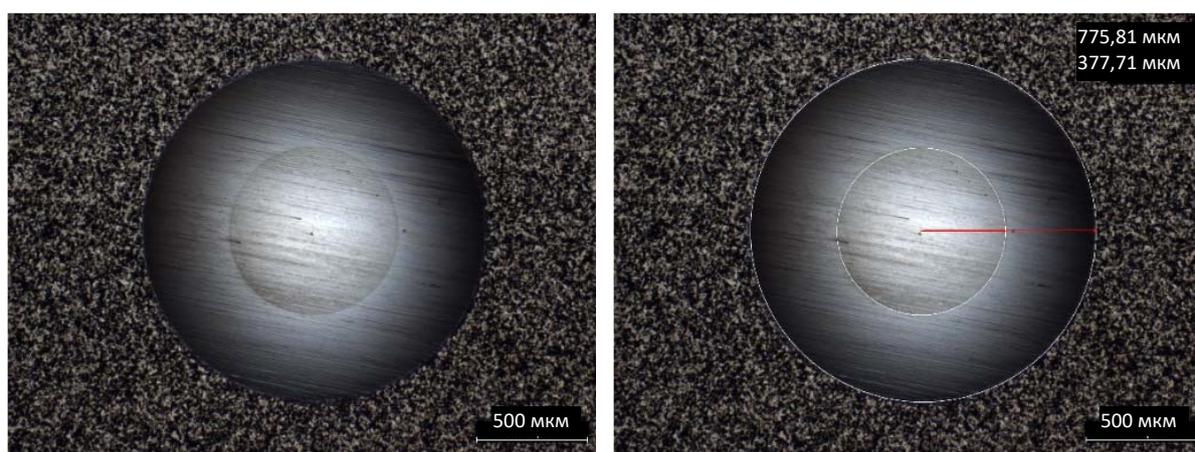


Рис. 3. Результаты измерения на приборе «Calotest» Cr покрытия из второй партии.

3.2.3. ТИК, Германия: PVD покрытия МАХ-фаза

Образцы из Zry-4 с Cr₂AlC покрытием МАХ-фаза для круговых исследований в рамках АКТОФ были изготовлены в Институте прикладных материалов Технологического института Карлсруэ. Покрытия были синтезированы с помощью двухэтапного процесса. На рис. 4 показаны схематическое изображение структуры осажденных покрытий на основе Zry-4, а также расположение мишеней и подложек при осаждении. Для получения многослойной структуры покрытий на подложке из Zry-4, показанных на рис. 4(а), подложки были покрыты слоем чистого Cr, причем электропитание подавалось только на Cr мишень, тогда как электропитание двух других мишеней было отключено. Оборудование для PVD работает в стартопном режиме, т.е. держатель образца поворачивается из одного положения нахождения мишени в другое и остается в течение различных периодов времени в каждом отдельном положении нахождения мишени (рис. 4(б)). Между мишенью и держателем подложек была установлена заслонка, допускающая осаждение лишь одного элемента в каждом положении. Толщины каждого элементного слоя составляют около 8 нм для хрома, 2 нм для углерода и 4 нм для алюминия, причем они рассчитаны в соответствии со стехиометрическим отношением этих трех элементов (2:1:1) в Cr₂AlC и с учетом их теоретических плотностей. Толщина каждого элементного слоя контролировалась путем регулировки времени задержки в каждой позиции нахождения мишени. Периодические циклы осаждения повторялись до тех пор, пока общая толщина пленки не составила около 5 мкм. В заключение путем подачи электропитания только на Cr мишень и без вращения держателя образцов подложек было выполнено осаждение дополнительного слоя Cr толщиной 1,5 мкм. Кроме того, подложки не нагревались и во время осаждения на них не подавалось напряжение смещения.

После осаждения образцы из Zry-4 с покрытием были подвергнуты на месте отжигу в атмосфере чистого аргона при атмосферном давлении с использованием промышленных термовесов для активации роста МАХ-фаз в результате твердофазной реакции наноразмерных элементных слоев. Скорости нагрева и охлаждения были установлены на уровне 10 К/мин, а время изотермической выдержки составляло 10 мин. Температура отжига была выбрана равной 550°C. МАХ-фаза Cr₂AlC была успешно получена, в то время как при таких условиях не была подтверждена значительная диффузия между Cr и Cr₂AlC.

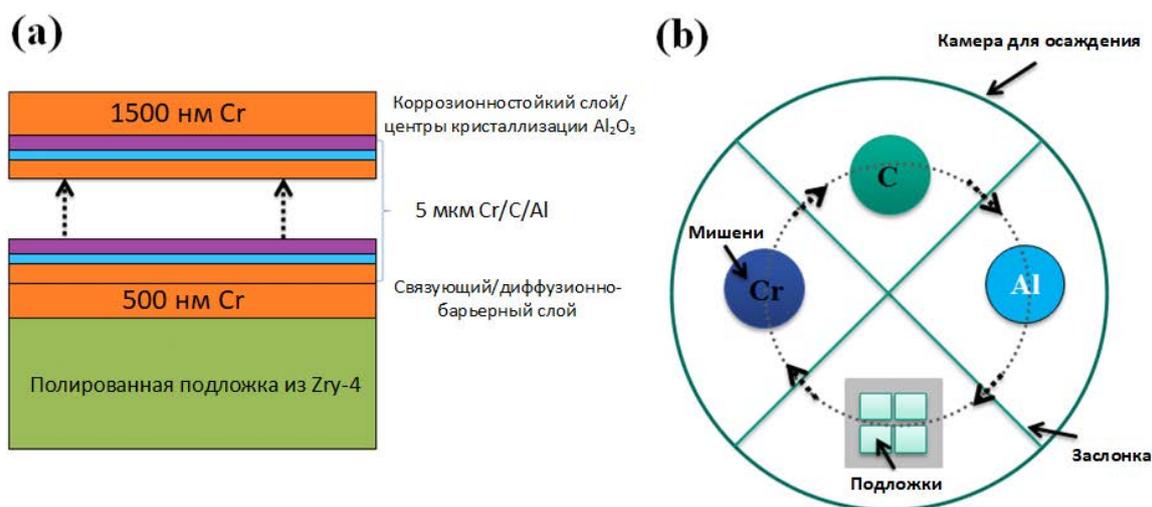


Рис. 4. Схематическое изображение а) структуры полученных осаждением покрытий на подложках из циркалоя-4 и б) расположения мишеней и подложек при осаждении.

Более подробная информация о процессе изготовления Cr₂AlC покрытий МАХ-фаза на подложках из Zry-4 приведена в докладе ТЕСДОС ЧТУ, а также в [56, 57].

3.2.4. ИЯХТ, Польша: PVD ZrSi-Cr покрытия

Основным материалом подложки был Zry-2, предоставленный компанией «Вестингауз электрик». Он был получен в виде пластин (12×12 см) и трубок (длиной 8 см). Образцы для исследований были вырезаны из пластин по схеме, которая была определена ранее. Трубчатые образцы не имели покрытия. Процессы нанесения покрытий были выполнены в Институте устойчивых технологий ITS (Радом, Польша). Технологические процессы осаждения покрытий были выполнены на установке с напылительной системой компании «Бальцерс» (рис. 5). Система содержит три магнетронных источника плазмы, три панели питания и управления. Она позволяет осаждать материалы от отдельных мишеней и получать многоэлементные покрытия. Использовались два магнетрона с отдельными, плоскими, круговыми мишенями с составом: ZrSi₂ и Cr. Были получены покрытия Zr₄₀Si₂₄Cr₃₆. На образцы для испытаний было нанесено покрытие с обеих сторон.

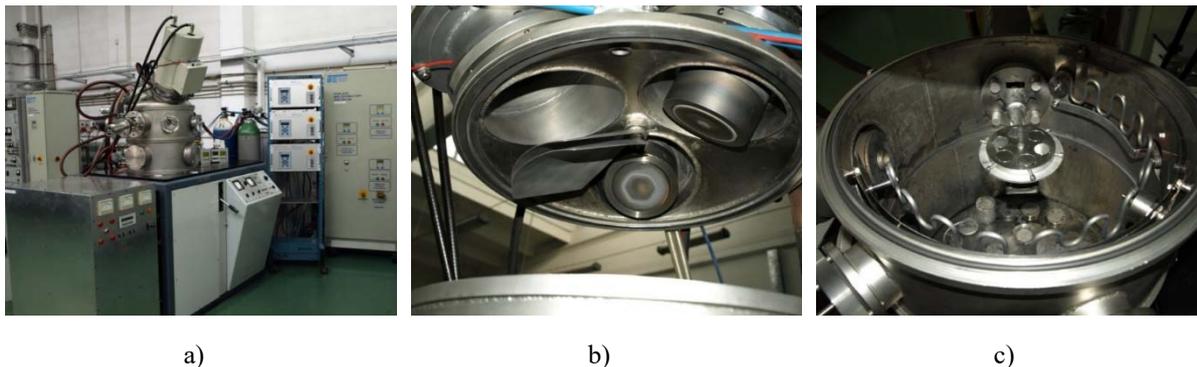


Рис. 5. Установка с напылительной системой компании «Бальцерс»: а) общий вид, б) расположение плоских круговых магнетронов, в) вид камеры.

Для испытаний на длительную коррозию в ЧТУ, ВТТ и ИЯХТ, а также для испытаний на ВТ (высокотемпературное) окисление в ТИК были подготовлены четырнадцать образцов с покрытием. При сравнении обеих сторон поверхности модифицированных образцов были одинаковыми. Темные контуры были видны в основном близко к краям (рис. 6). Размеры исходного материала не изменялись.

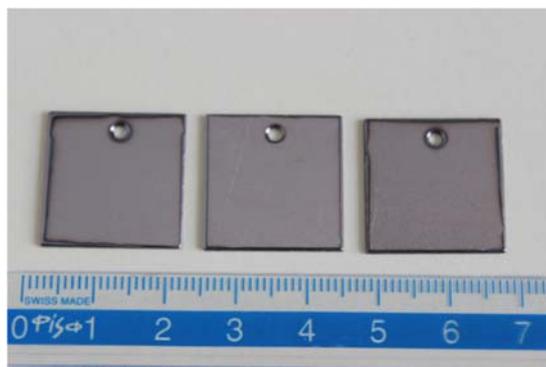


Рис. 6. Общий вид образцов из Zry-2 с PVD покрытием.

Более подробную картину поверхности можно было наблюдать с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ). Видимая ориентация была результатом первоначальной морфологии поверхности материала (которая связана с изготовлением материала). Это означает, что полученный слой был тонким и была отображена морфология поверхности исходного материала (рис. 7 (а, б)). На поверхностях были видны скопления осажденного материала. Были различимы границы зерен. Были видны трещины модифицированного осажденного слоя (рис. 7 (с, d)).

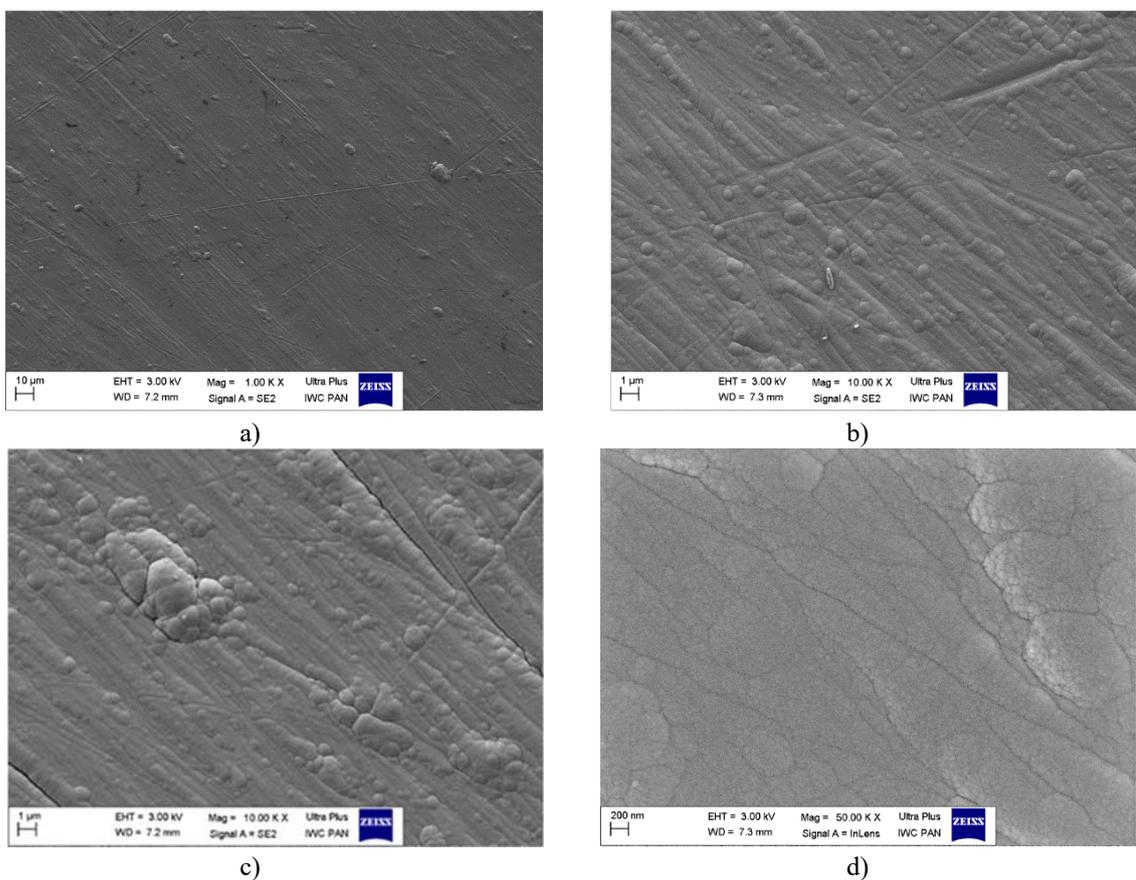


РИС. 7. Изображения PVD-модифицированных поверхностей ZrO₂, полученные с помощью СЭМ:
 А) Увел. - 1000, б) и с) Увел. - 10 000, д) Увел. - 50000.

Результаты анализа элементного состава полученного покрытия методом ЭРС (энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии) представлены в таблице 10. Было подтверждено наличие Zr, Si и Cr.

ТАБЛИЦА 10. ЭЛЕМЕНТНЫЙ СОСТАВ PVD-МОДИФИЦИРОВАННОЙ ПОВЕРХНОСТИ ZrO₂

	Si	Cr	Zr
ат. %	43,30	34,80	21,90
масс. %	24,20	36,00	39,80

Металлографический срез был подготовлен в соответствии с процедурой, определенной в ИЯХТ для подготовки образцов из Zr. Можно четко выделить две области: материал подложки и осажденное покрытие (рис. 8).

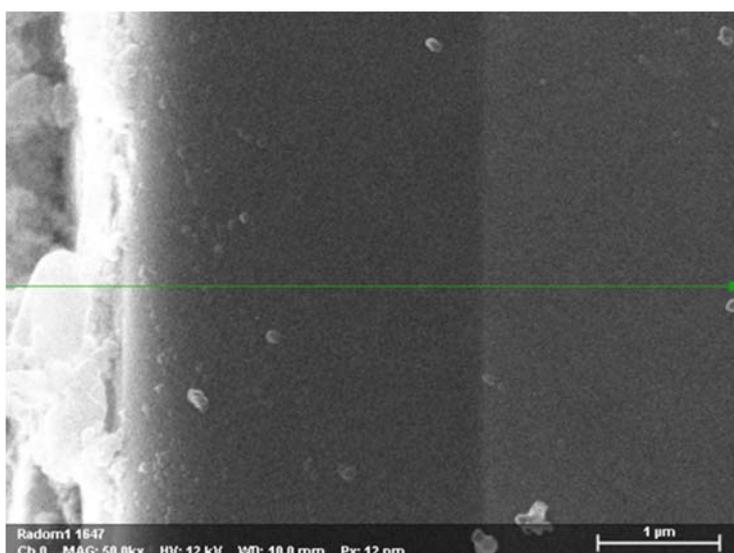


РИС. 8. Результаты исследований среза Zry-2 с PVD покрытием: металлографический срез.

Элементный анализ подтвердил наличие в осажденном слое Zr, Si и Cr. Были подтверждены определенный уровень идентифицированных элементов и общая толщина осажденного слоя (массовых %): Zr – 40, Si – 24, Cr – 36. В базовом материале был обнаружен только Zr. Вкратце, как показано на рис. 9, были изготовлены образцы из Zry-2 с однородными покрытиями из $Zr_{40}Si_{24}Cr_{36}$ толщиной 2,5 мкм.

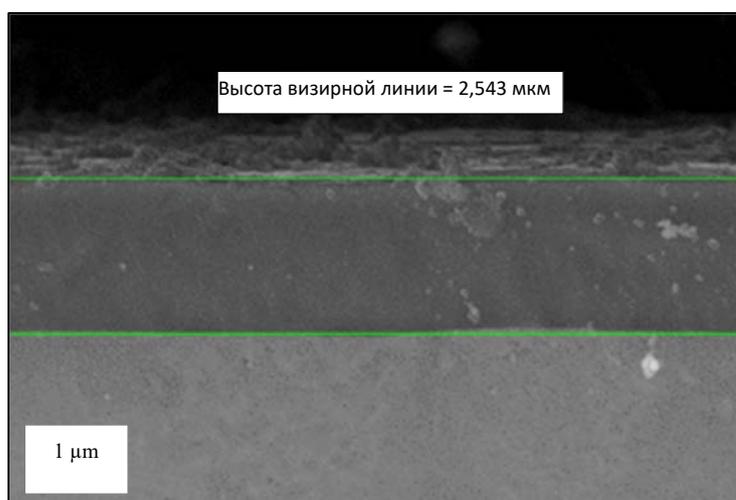


РИС. 9. Результаты исследований среза PVD-модифицированного Zry-2 — измерения толщины модифицированного слоя.

3.3. ИСПЫТАНИЯ НА ДЛИТЕЛЬНУЮ КОРРОЗИЮ

К испытаниям на длительную коррозию в качестве одной из подзадач КИ присоединились три различных учреждения. Ниже в настоящем докладе описываются экспериментальные установки и процедуры. Дополнительные сведения можно найти в прилагаемых отдельных документах. Испытания на длительную коррозию были проведены в условиях ВХР двух типов LWR – PWR (VTT, ИЯХТ) и ВВЭР (ЧТУ). Одиночный период был определен равным 21 суткам, а цель – минимально 3 периода (в совокупности 63 дня). По истечении 63 суток проводились разрушающие испытания. Если оставалось

достаточно материала, то испытания продолжались с целью выявления результатов более длительного воздействия. Данные испытаний на длительную коррозию представлены в таблице 11.

ТАБЛИЦА 11. ИСПЫТАНИЯ НА ДЛИТЕЛЬНУЮ КОРРОЗИЮ, ПРОВЕДЕННЫЕ ОТДЕЛЬНЫМИ УЧАСТНИКАМИ С МАКСИМАЛЬНОЙ СОВОКУПНОЙ ПРОДОЛЖИТЕЛЬНОСТЬЮ ДЛЯ КАЖДОГО ТИПА МАТЕРИАЛА ATF

ЧТУ — Чешская Республика	
Материал оболочки	Испытания на длительную коррозию (ВХР ВВЭР)
AISI 348	164 дня
Zry-2 с Cr покрытием	164 дня
Zry-4 с покрытием из МАХ-фазы	147 суток
Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием	101 сутки
Э110 этал.	164 дня
Э110 с Cr покрытием	164 дня
VTT – Финляндия	
Материал оболочки	Испытания на длительную коррозию (ВХР PWR)
AISI 348	63 дня
Zry-4 этал.	63 дня
Zry-2 с Cr покрытием	63 дня
Zry-4 с покрытием из МАХ-фазы	63 дня
Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием	16,5 суток
ИЯХТ — Польша	
Материал оболочки	Испытания на длительную коррозию (ВХР PWR)
AISI 348	63 дня
Zry-4 этал.	63 дня
Zry-2 с Cr покрытием	63 дня
Zry-4 с покрытием из МАХ-фазы	63 дня
Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием	63 дня
Zry-2 этал.	63 дня

3.4. УСТАНОВКИ, УСЛОВИЯ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ

Экспериментальные процедуры различаются в зависимости от имеющихся установок и стандартных процедур, используемых в учреждениях. Например, в ЧТУ/UJP проводились статические испытания в 4 дм³ автоклаве при 360°С, 19,4 МПа. В VTT использовались стандартные рабочие параметры PWR с контуром рециркуляции и контролем ВХР в реальном времени, в то время как в ИЯХТ статическое испытание проводилось в 1 дм³ автоклаве при 360°С, 19,5 МПа.

Характеристики образцов определялись до, во время и после испытаний, причем использовались как неразрушающие, так и разрушающие методы. Методы определения характеристик включали визуальный осмотр, СЭМ, рентгеновскую дифракцию (РД), энергодисперсионную спектроскопию (ЭДС),

металлографию, измерения изменения массы или измерения водорода. Подробную информацию об экспериментальных установках и процедурах можно найти в докладах TECDOC.

3.4.1. ЧТУ/UJP

Статические испытания проводились в автоклаве с активным объемом 4 дм³. Были заданы стандартный ВХР ВВЭР (1050 млн⁻¹ В, 15,9 млн⁻¹ К и 1 млн⁻¹ Li), температура 360°C и давление 19,4 МПа. Предварительно установленный период составлял 21 сутки с последующими оценками (визуальными, привеса массы, водорода, анализом микроструктуры). В конце запланированных испытаний проводилось определение характеристик разрушающимися методами. На рис. 10 показан автоклав, использовавшийся для проведения статических испытаний.



РИС. 10. Автоклав, использовавшийся для проведения статических испытаний.

Краткие результаты испытаний материалов приведены в таблице 12. Испытание образцов из Zry-2 с покрытием ZrSi-Cr было начато позже ввиду проблем с наличием образцов. Образцы с покрытием из МАХ-фазы были удалены из испытаний после 7 периодов. Как указано в таблице 12, продолжительность восьмого периода составляла всего 17 суток.

ТАБЛИЦА 12. МАТРИЦА РЕЗУЛЬТАТОВ ИСПЫТАНИЙ ПЛАСТИНЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ НА КОРРОЗИЮ В УСЛОВИЯХ ВВЭР

Идентификатор образца	Материал	Число периодов	Суммарное время окисления [сут.]
Zry2-1	Эталонный Zry-2	8	164
Zry2-2	Эталонный Zry-2	3	63
3Cr3-01	Zry-2 + Cr покрытие	8	164
3Cr3-02	Zry-2 + Cr покрытие	8	164
3Cr3-03	Zry-2 + Cr покрытие	3	63
КИТ-21	Zry-4 + МАХ-фаза	7	147
КИТ-22	Zry-4 + МАХ-фаза	7	147
КИТ-23	Zry-4 + МАХ-фаза	3	63
SS-PS-13	AISI 348	8	164

ТАБЛИЦА 12. ТАБЛИЦА ИСПЫТАНИЙ НА КОРРОЗИЮ ОБРАЗЦОВ ПЛАСТИН В УСЛОВИЯХ WWER (продолжение)

Идентификатор образца	Материал	Число периодов	Суммарное время окисления [сут.]
SS-PS-14	AISI 348	8	164
SS-PS-15	AISI 348	3	63
INCT51	Zry-2 + ZrSi-Cr	3	63
INCT52	Zry-2 + ZrSi-Cr	5	101
INCT53	Zry-2 + ZrSi-Cr	5	101

3.4.2. VTT

Автоклавные испытания в воде PWR проводились в автоклавной лаборатории VTT. Автоклав соединен с контуром рециркуляции воды и обеспечивается поддержание стандартного ВХР PWR с параметрами 360°C , $[\text{Li}] = 2\text{--}2,2 \text{ млн}^{-1}$, $[\text{B}] = 600\text{--}1000 \text{ млн}^{-1}$ и $[\text{H}_2] = 3 \text{ млн}^{-1}$. Контур включает участки низкого и высокого давления. Участок низкого давления включает бак подпиточной воды, оснащенный системами газификации азотом, водородом и смесью газов, рециркуляционный насос низкого давления, ионитный фильтр смешанного действия, используемый для очистки воды перед подготовкой испытательного раствора, и аппаратуру измерения ВХР для онлайн-мониторинга проводимости, pH, растворенного кислорода и растворенного водорода. Аппаратуру контроля ВХР можно переключать для измерения параметров воды на входе или выходе автоклава. Автоклав, использованный в данной кампании испытаний, показан на рис. 11. Более подробное описание можно найти в отдельном докладе VTT.



Рис. 11. Схематическая структура контура рециркуляции воды, включая автоклав, (вверху) и фотография автоклава, использованного в данной кампании испытаний (внизу).

3.4.3. ИЯХТ

Оборудование, использованное для испытаний на длительную коррозию, представляло собой автоклав «Рагг 4653» с активным объемом 1 дм^3 . Образцы закреплялись на держателе для образцов (рис. 12 (а) и (б)) и помещались в автоклав. Использовался стандартный ВХР PWR. Параметры были следующими: 360°C ; $19,5 \text{ МПа}$ в $0,5 \text{ дм}^3$ воды PWR. Структурная схема экспериментальной процедуры представлена на рис. 13. Анализ образцов проводился через 21, 42 и 63 дня, а анализ ВХР – через 21 и 42 дня.

В ходе экспериментов использовалась высокодеионизированная вода из системы очистки воды «Milliroge», которая подвергалась дополнительной обработке для моделирования ВХР PWR. Стандартные условия были следующими: $[Li] = 2-2,2 \text{ млн}^{-1}$ и $[B] = 600-1000 \text{ млн}^{-1}$ [58]. Процедура обработки включала два этапа: добавление борной кислоты (H_3BO_3) для получения концентрации $[B] = 800 \text{ млн}^{-1}$, а затем добавление гидроксида лития ($LiOH$) для получения концентрации $[Li] = 2,1 \text{ млн}^{-1}$. Использовались порошкообразная H_3BO_3 (99%, экстрачистая от компании «АРКОС ОРГАНИКС») и $LiOH \cdot H_2O$ от компании «ПОЧ». Для определения концентрации ионов в воде использовался метод МС-ИСП. Другие измерения проводились с помощью многофункционального лабораторного измерителя рН «ProLab2500», позволявшего измерять рН, общее количество растворенного кислорода (ОКРК) и удельную электропроводность (σ). Средние результаты двух измерений представлены в таблице 13.



a)



b)

РИС. 12. Оборудование, использованное для испытаний на длительное окисление:
а) автоклав «Parr 4653» и б) держатель образцов.

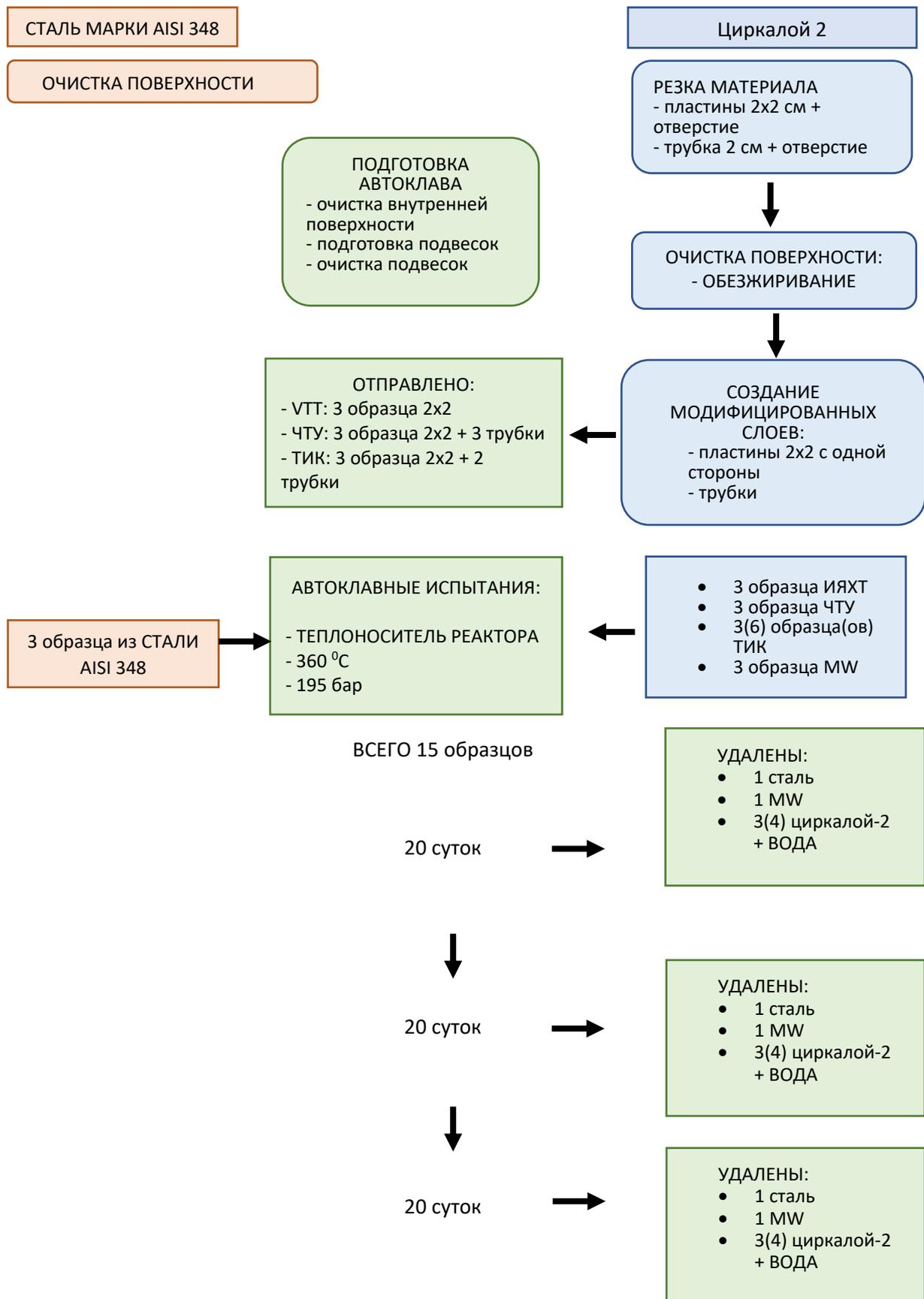


Рис. 13. Структурная схема процедур кругового исследования, выполненных в ИЯХТ.

В таблице 13 показано, что pH и ОКПК в исходной воде и в начале испытания были примерно одинаковыми. Удельная электропроводность воды через 21 и 42 дня возросла примерно в 6 раз, что может быть результатом более высокой концентрации в воде ионов, поступающих в нее при растворении покрытия. Концентрация всех анализируемых ионов, кроме Na^+ , через 21 сутки значительно возросла. Интересно, что спустя еще 21 сутки концентрация несколько снизилась.

ТАБЛИЦА 13. ХИМИЧЕСКИЙ СОСТАВ И ФИЗИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВОДЫ, ИСПОЛЬЗОВАННОЙ В АВТОКЛАВНЫХ ИСПЫТАНИЯХ НА КОРРОЗИЮ

	Исходная вода [мг/л]	0 суток [мг/л]	21 сутки [мг/л]	42 дня [мг/л]
Cl^-	0,053	0,45	7,03	2,16
NO_3^-	0,093	0,037	1,46	0,183
SO_4^{2-}	0,305	0,438	9,79	5,37
Na^+	0,062	4,3	3,09	2,18
K^+	0,012	0,95	—	0,96
Ca^{2+}	0,094	2,3	6,98	5,08
Li^+	—	0,4	2,09	1,65
Mg^{2+}	—	0,35	0,25	0,35
ОКПК	8,48	8,64	7,41	7,32
pH	6,38	6,75	5,68	6,51
σ [мкСм/см]	1,45	10,81	62,3	66,1

Испытаниям были подвергнуты 6 различных типов образцов:

- Zry-2 с PVD Cr покрытием; ЧТУ, толщина покрытия 26 мкм;
- Zry-4 с PVD Cr/Cr₂AlC/Cr (MAX-фаза) покрытием; ТИК, толщина покрытия 6 мкм;
- Zry-2 с PVD Zr₄₀Si₂₄Cr₃₆ покрытием; ИЯХТ, толщина покрытия 2,5 мкм;
- нержавеющая сталь марки AISI 348; УСП, Бразилия;
- эталонный, Zry-2 без покрытия;
- эталонный, Zry-4 без покрытия.

Материалы, полученные до проведения испытаний в автоклаве, показаны на рис. 14.

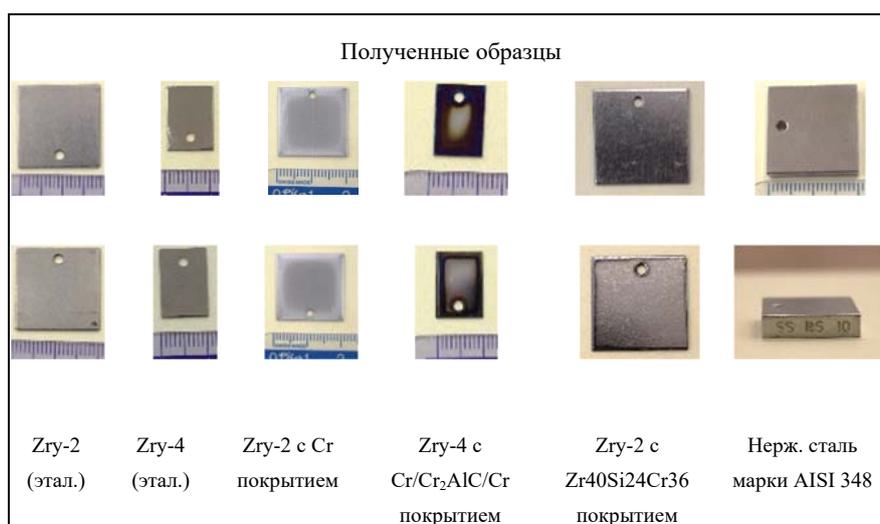


РИС. 14. Общий вид полученных образцов (с двух сторон).

Определение характеристик образцов во время и после испытаний предусматривает использование как неразрушающих, так и разрушающих методов. Были использованы следующие методы:

- наблюдение морфологии поверхности;
 - оптическая микроскопия (ОМ) с помощью микроскопа «Bresser Science ADL-601 P» (компании «Брессер»);
 - сканирующая электронная микроскопия (СЭМ) с помощью микроскопа DSM 942 (компании «Цейсс») и сканирующая электронная микроскопия высокого разрешения (СЭМ-ВР) помощью микроскопа «ULTRA plus» (компании «Цейсс»);
- элементный анализ с помощью системы ЭДС с анализатором «Quantax 400 » (компании «Брукер»);
- фазовый анализ с использованием рентгеновского дифрактометра «Advanced 8» (компании «Брукер»);
- исследование срезов методами СЭМ-ВР, ЭДС;
- контроль изменения массы с помощью лабораторных весов «METTLER TOLEDO EXCELLENCE XS 105».

3.5. РЕЗУЛЬТАТЫ: ЧТУ/UJP

Перед проведением испытаний были измерены размеры и вес подготовленных и очищенных образцов и была рассчитана площадь поверхности, подвергаемой коррозии в автоклаве.

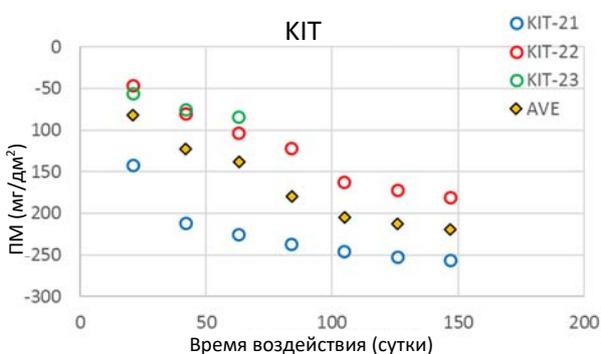
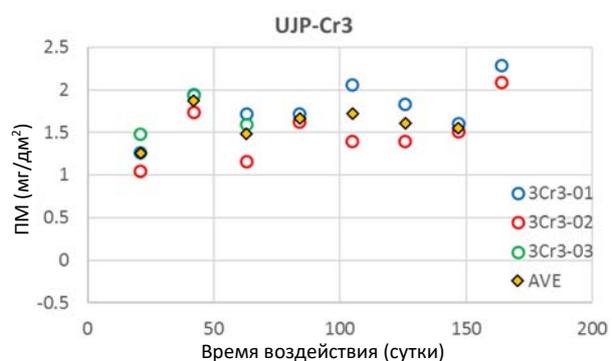
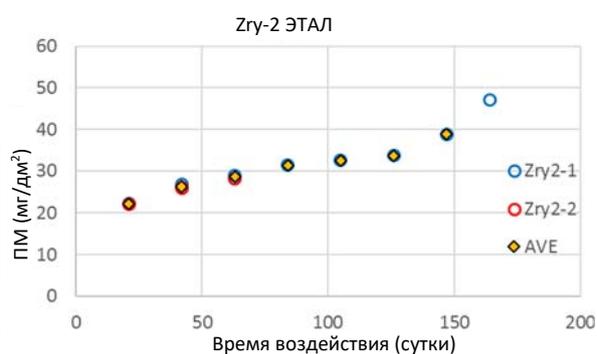
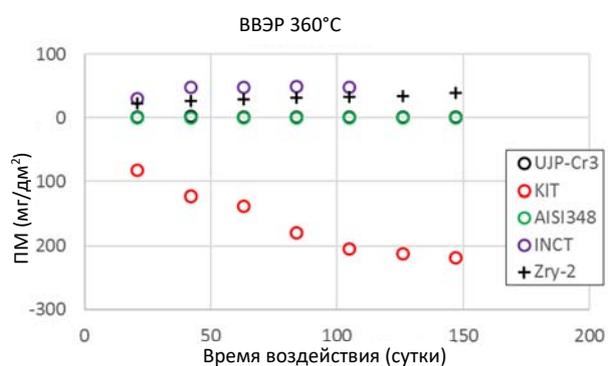
Результаты визуальной оценки образцов во время испытания в каждый период до шестого периода приведены в таблице 15. Визуальная оценка показывает значительное отслаивание и растворение покрытия МАХ-фаза. Ввиду отслаивания убыль массы не является полностью репрезентативным параметром при оценке кинетики коррозии. Однако даже после нескольких периодов на поверхности все еще видны остатки нижних частей системы покрытия.

Полученные образцы с Cr покрытием имели другой цвет в центральной области по сравнению с областями, близкими к краям. Это было связано с геометрической формой образца и ориентацией роста кристаллов. Рост кристаллов отличается в областях, расположенных рядом с краями, что вызывает изменение отражательной способности материала. Подобный эффект не виден в случае трубчатой геометрической формы.

Сводная информация о результирующих изменениях массы, оцениваемых после каждого периода до 8 периодов, представлена в таблице 14. Некоторые образцы подвергались испытанию до 8 периодов (164 дня), а некоторые были удалены после 3 периодов (63 дня) для проведения разрушающих испытаний. Графики результатов представлены на рис. 15. Результаты свидетельствуют о весьма низком (почти пренебрежимо малом) привесе массы образцов с Cr покрытием и из нержавеющей стали марки AISI 348. В начале испытания наблюдается устойчивая убыль массы образца от ТИК с покрытием МАХ-фаза и большой привес массы образца с покрытием ZrSi-Cr. Затем скорость убыли или привеса массы снижается. За исключением образцов от ТИК, у которых наблюдалось отслаивание покрытия, и одного образца с поврежденным покрытием (ZrSi-Cr), возможно, вследствие обращения с ним (INCT 51), результаты очень хорошо согласуются и имеют минимальный разброс данных измерений (для каждого типа оболочки ATF было измерено три образца). Стандартная кинетика для Zгу-2 была подтверждена изменением кинетики в период между 126 и 147 сутками, что подтверждает правильность процедуры, использованной в данном испытании.

ТАБЛИЦА 14. ПРИВЕС МАССЫ ОБРАЗЦОВ В ХОДЕ АВТОКЛАВНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА ПО ОПРЕДЕЛЕНИЮ КОРРОЗИИ

Материал	Обозначение	Пор. номер периода/время воздействия: привес массы [мг/дм ²]							
		1/21 сут.	2/42 дня	3/63 дня	4/84 дня	5/105 сут.	6/126 сут.	7/147 сут.	8/164 дня
Zry-2	Zry2-1	22,2	26,8	29,0	31,4	32,5	33,6	38,8	47,1
ЭТАЛ.	Zry2-2	22,1	25,9	28,2			Удален		
Zry-2 с PVD Cr покрытием	3Cr3-01	1,3	1,9	1,7	1,7	2,1	1,8	1,6	2,3
	3Cr3-02	1,0	1,7	1,2	1,6	1,4	1,4	1,5	2,1
	3Cr3-03	1,5	1,9	1,6			Удален		
Zry-4 с PVD покрытием MAX-фаза	KIT-21	-142,1	-211,7	-225,7	-237,3	-246,4	-252,8	-256,4	—
	KIT-22	-46,8	-80,3	-103,5	-122,4	-163,3	-172,7	-181,5	—
	KIT-23	-56,3	-75,6	-84,2			Удален		
AISI 348	SS-PS-13	-0,2	0,0	-0,1	0,0	0,2	0,0	-0,1	0,2
	SS-PS-14	0,1	0,2	-0,2	0,2	0,2	0,1	0,3	0,5
	SS-PS-15	0,5	0,4	0,0			Удален		
Zry-2 с PVD	INCT51	28,8	46,5	33,6			Удален		
ZrSi-Cr покрытием	INCT52	30,8	46,7	46,7	48,1	50,1	—	—	—
	INCT53	31,3	48,8	48,1	49,7	46,0	—	—	—



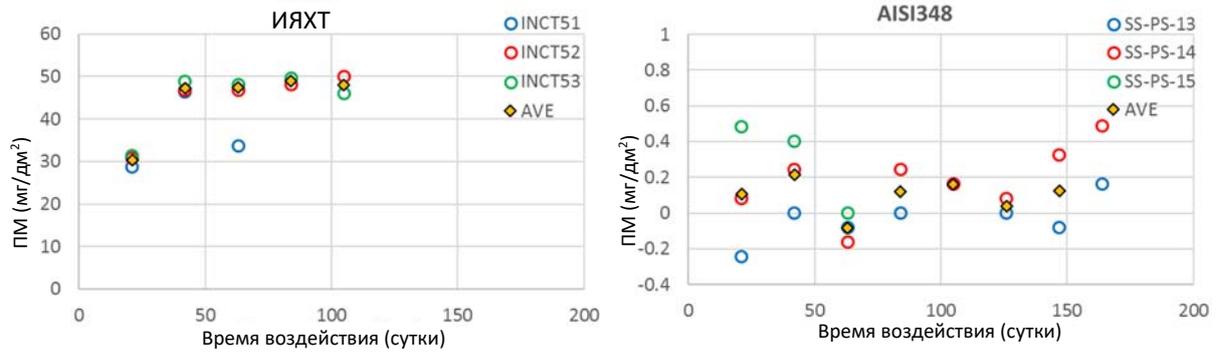


Рис. 15. Привес массы образцов во время эксперимента по изучению длительной коррозии в условиях ВХР ВВЭР при 360°C (эталонный Zr₂, с PVD Cr покрытием, с покрытием МАХ-фаза, AISI 348 и с ZrSi-Cr покрытием).

Результаты металлографической оценки образцов оболочки ATF после суммарного воздействия в течение 63 суток представлены в таблице 16. Визуальный осмотр подтверждает незначительное окисление образца из нержавеющей стали марки AISI 348 и образца с Cr покрытием, отслаивание на образце с покрытием МАХ-фаза и окисление Zr подложки под ZrSi-Cr покрытием.

ТАБЛИЦА 15. ВИЗУАЛЬНАЯ ОЦЕНКА ОБРАЗЦОВ ВО ВРЕМЯ И ПОСЛЕ ИСПЫТАНИЙ НА ДЛИТЕЛЬНУЮ КОРРОЗИЮ В УСЛОВИЯХ ВХР ВВЭР

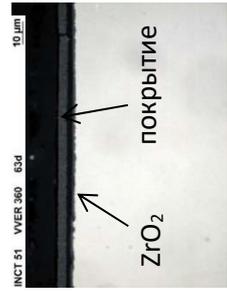
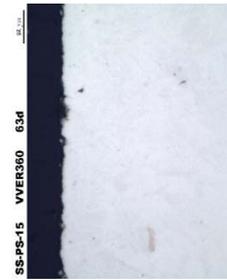
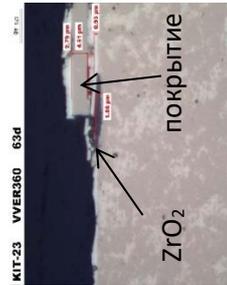
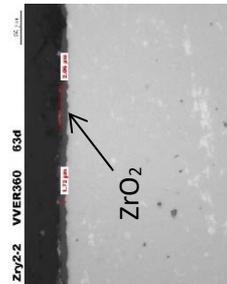
Время, сутки	ЭТАЛ.	Zry-2-Cr3-01 с PVD Cr покрытием	КП-21 с PVD покрытием МАХ-фаза	55-PS-13a VVER360 21d	VVER360 21d	INCТ51 VVER360 21d
21	Zry2-1a VVER360 21d	3C3-01a VVER360 21d	КП-21a VVER360 21d	55-PS-13a VVER360 21d	VVER360 21d	INCТ51a VVER360 21d
42	Zry2-1a VVER360 42d	3C3-01a VVER360 42d	КП-21a VVER360 42d	55-PS-13a VVER360 42d	VVER360 42d	INCТ51a VVER360 42d
63	Zry2-1a VVER360 63d	3C3-01a VVER360 63d	КП-21a VVER360 63d	55-PS-13a VVER360 63d	VVER360 63d	INCТ51a VVER360 63d
84	Zry2-1a VVER360 84d	3C3-01a VVER360 84d	КП-21a VVER360 84d	55-PS-13a VVER360 84d	VVER360 84d	INCТ51a VVER360 84d

ТАБЛИЦА 15. ВИЗУАЛЬНАЯ ОЦЕНКА ОБРАЗЦОВ ВО ВРЕМЯ И ПОСЛЕ ИСПЫТАНИЯ НА ДЛИТЕЛЬНОЮ КОРРОЗИЮ В УСЛОВИЯХ ВХР ВВЭР
(продолжение)

Время, сутки	ЭТАЛ. Zry-2-1 без покрытия	Zry-2-Cr3-01 с PVD Cr покрытием	KIT-21 с PVD покрытием МАХ-фаза	SS-PS-13 АISI 348	INCT51 с PVD ZrSi-Cr покрытием
105					—
					—
126					

ТАБЛИЦА 16. ОЦЕНКА МИКРОСТРУКТУРЫ ОБРАЗЦОВ ПОСЛЕ 63 СУТОК ИСПЫТАНИЙ НА КОРРОЗИЮ В УСЛОВИЯХ ВХР ВВЭР

Время, сутки	ЭТАЛ.	ZrO ₂ -Cr3-01	KIT-21	SS-PS-13	INCT51
	Zry-2-1 без покрытия	с PVD Cr покрытием	с PVD покрытием MAX-фаза	AISI 348	Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием



Через 63 дня методом разрушающего контроля с плавкой в инертном газе (ПИГ) (анализатор «G8 Galileo» компании «Брукер») было проанализировано содержание водорода. Результаты измерения содержания водорода в образцах после воздействия в течение 63 суток представлены в таблице 17. Как можно видеть, в образце из Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием было обнаружено очень высокое значение содержания H. Распределение и ориентация гидридов в образце с ZrSi-Cr покрытием (INCT 51) показаны на металлографическом срезе образца на рис. 16. Следует также отметить, что концентрация водорода в образце с Cr покрытием такая же, как в образце без покрытия. Однако механизмы образования водорода в обоих случаях значительно отличаются, что означает, что поглощение водорода в образцах с Cr покрытием намного выше, чем в Zr сплавах без покрытия.

ТАБЛИЦА 17. СОДЕРЖАНИЕ ВОДОРОДА ПОСЛЕ 63 СУТОК АВТОКЛОВОГО ЭКСПЕРИМЕНТА ПО ОПРЕДЕЛЕНИЮ КОРРОЗИИ

Материал	ЭТАЛ.	Zry-2-Cr3-01	КИТ-21	SS-PS-13	INCT51
	Zry2-1 без покрытия	с PVD Cr покрытием	Zry-4 с PVD покрытием из MAX-фазы	AISI 348	Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием
Обозначение	Zry-2-2	3Cr3-03	КИТ-23	SS-PS-15	INCT53
63 дня: H, млн ⁻¹	14,2	15,0	30,4	1,3, 1,4	191,8; 191,2

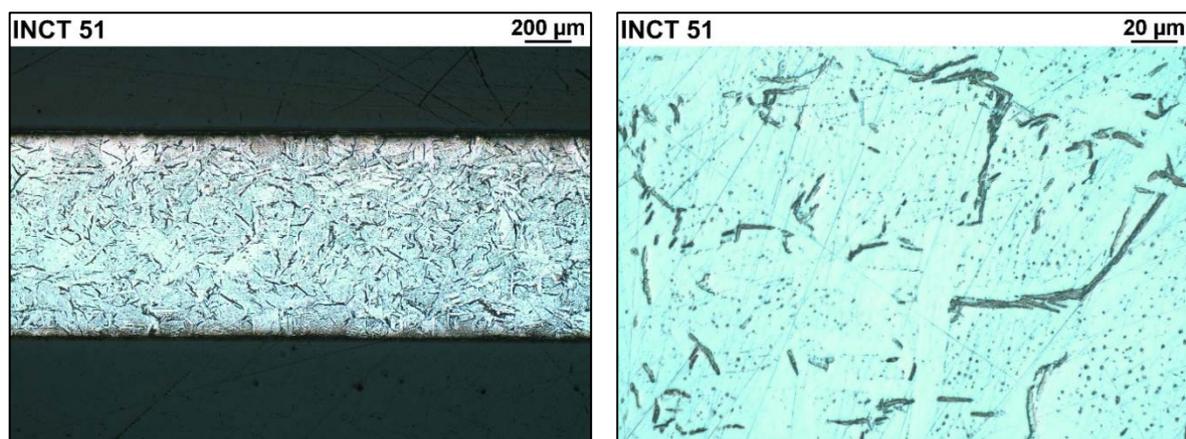


РИС. 16. Оценка микроструктуры образца INCT 51 с ZrSi-Cr покрытием (содержание H: 191,6 млн⁻¹) после 63 суток испытаний на коррозию в условиях ВХР ВВЭР. Распределение гидридов.

3.6. РЕЗУЛЬТАТЫ: VTT

3.6.1. Сплавы на основе Zr без покрытия: эталонные образцы

Общий вид и подробные изображения во вторичных электронах (ВЭ) эталонного образца из цирколия-2 без покрытия, который подвергся воздействию в течение 63 суток (с использованием одного пластинчатого образца, такого же, как в случае эталонного образца из Zry-4), показаны на рис. 17. Толщина оксидного слоя составляет от 1 мкм до 10 мкм. Слой был непрерывным, однако он был слегка пористым, и в нем образовалось несколько сквозных трещин.

На рис. 18 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Zr, Sn и Ni, на которых слой оксида находится слева. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков (ВУ) показаны на рис. 19.

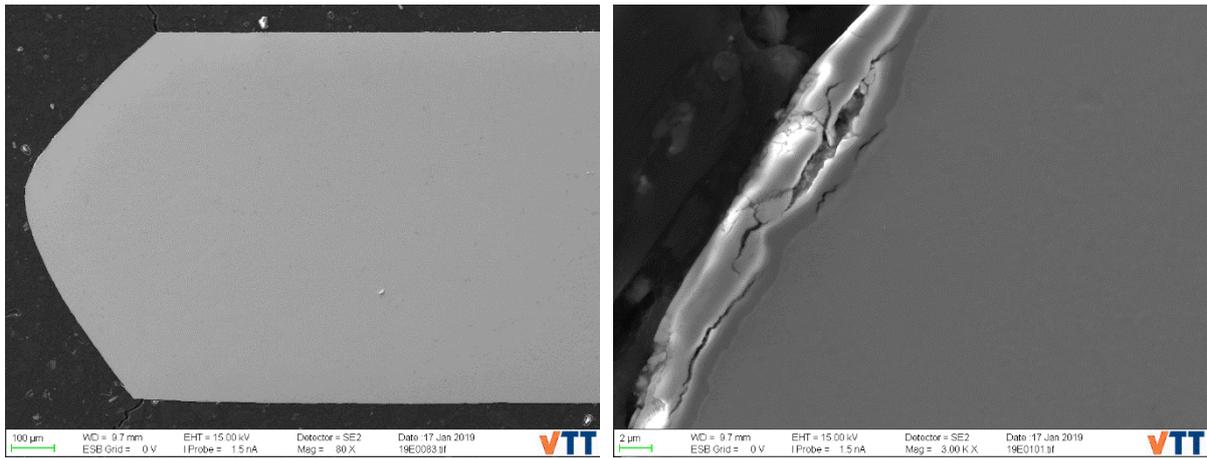


РИС. 17. ВЭ-изображения эталонного образца из Zry-2 от ЧТУ (63-суточное воздействие в условиях ВХР PWR).

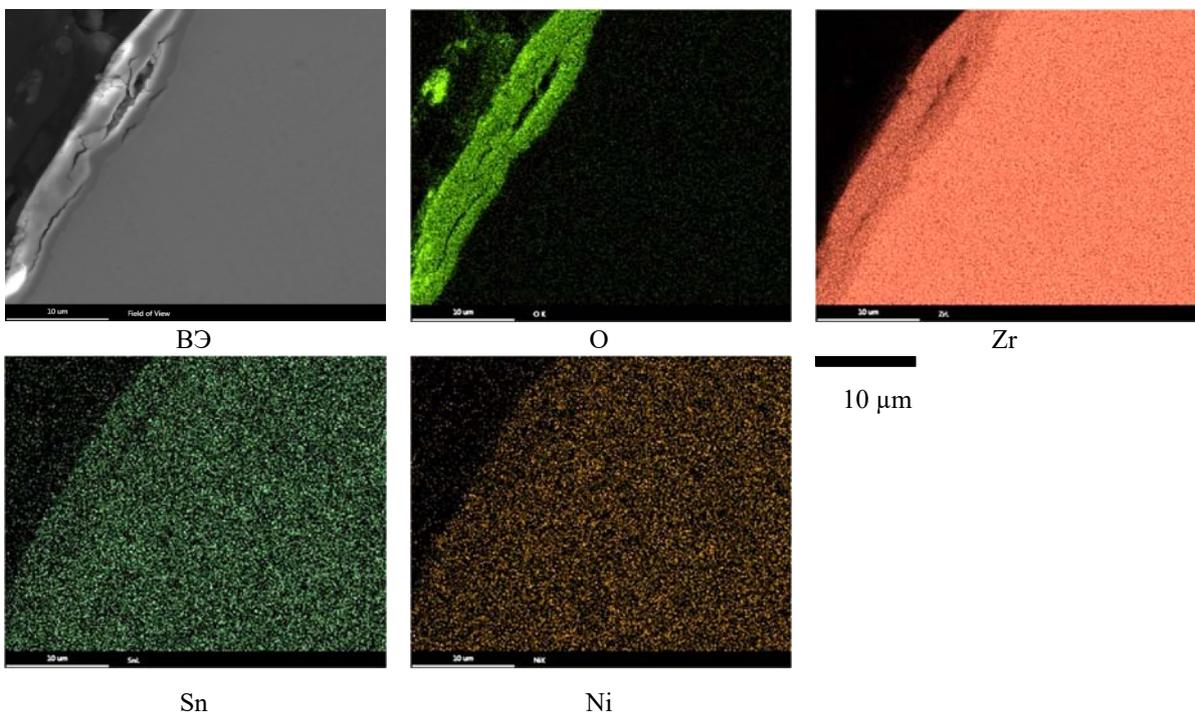
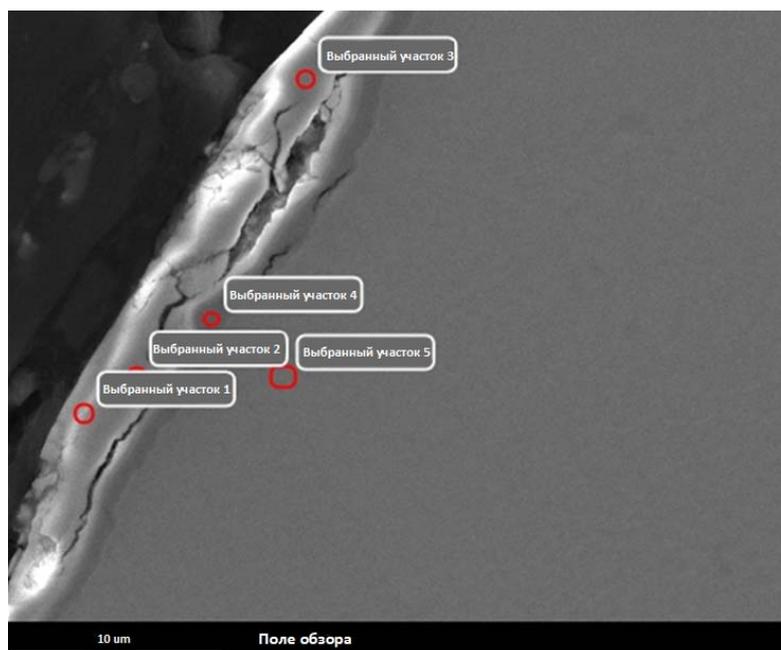


РИС. 18. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Zr, Sn и Ni в эталонном образце из Zry-2 от ЧТУ (63-суточное воздействие).



	O K	Ni L	Zr L	Sn L	Fe K
Выбранный участок 1	29,3	0,5	68,6	0,9	0,8
Выбранный участок 2	28,4	0,2	70,1	0,6	0,8
Выбранный участок 3	29,0	0,4	69,1	0,8	0,8
Выбранный участок 4	25,7	0,8	71,6	1,1	0,9
Выбранный участок 5	1,9	0,2	96,4	0,7	0,8

РИС. 19. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализ химический состав (масс.%) ВУ эталонного образца из Zry-2 от ЧТУ (63-суточное воздействие). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

Морфология эталонного образца из Zry-4 без покрытия, который подвергался воздействию в течение 63 суток, показана на рис. 20. Эталонный образец подвергался воздействию таким образом, что один и тот же образец извлекался из автоклава после каждого периода воздействия (21, 42 и 63 дня), а затем помещался обратно в автоклав после фотографирования и измерения изменения массы. После заключительного воздействия подготавливался срез образца. Толщина оксидного слоя на поверхности образца, как правило, варьировалась от 1 мкм до 10 мкм. Слой был непрерывным, хотя и слегка пористым, и в нем наблюдались несколько сквозных трещин.

На рис. 21 представлены данные картирования методом СЭМ-ЭРД. Данные анализа выбранных участков представлены на рис. 22. Между внешним оксидным слоем и подложкой на ВЭ-изображении можно видеть более темный слой толщиной несколько микрон. По данным анализа выбранных участков этот слой представляет собой оксид с слегка повышенным содержанием Cr и Fe. В оксидном слое также наблюдаются частицы, богатые Cr/Fe (см. распределение Cr/Fe на рис. 21).

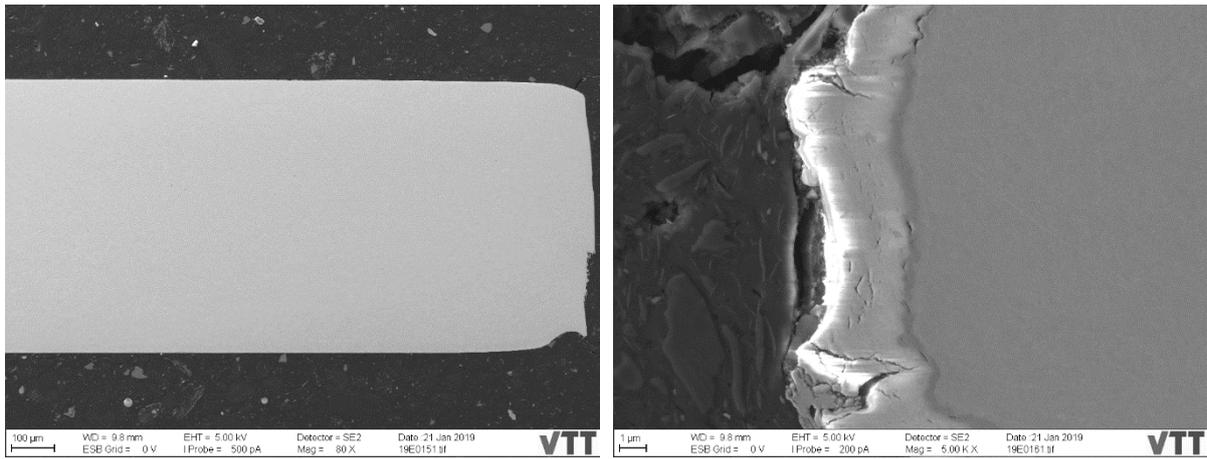


РИС. 20. ВЭ-изображения эталонного образца из Zry-4 без покрытия (63 дня в условиях ВХР РWR).

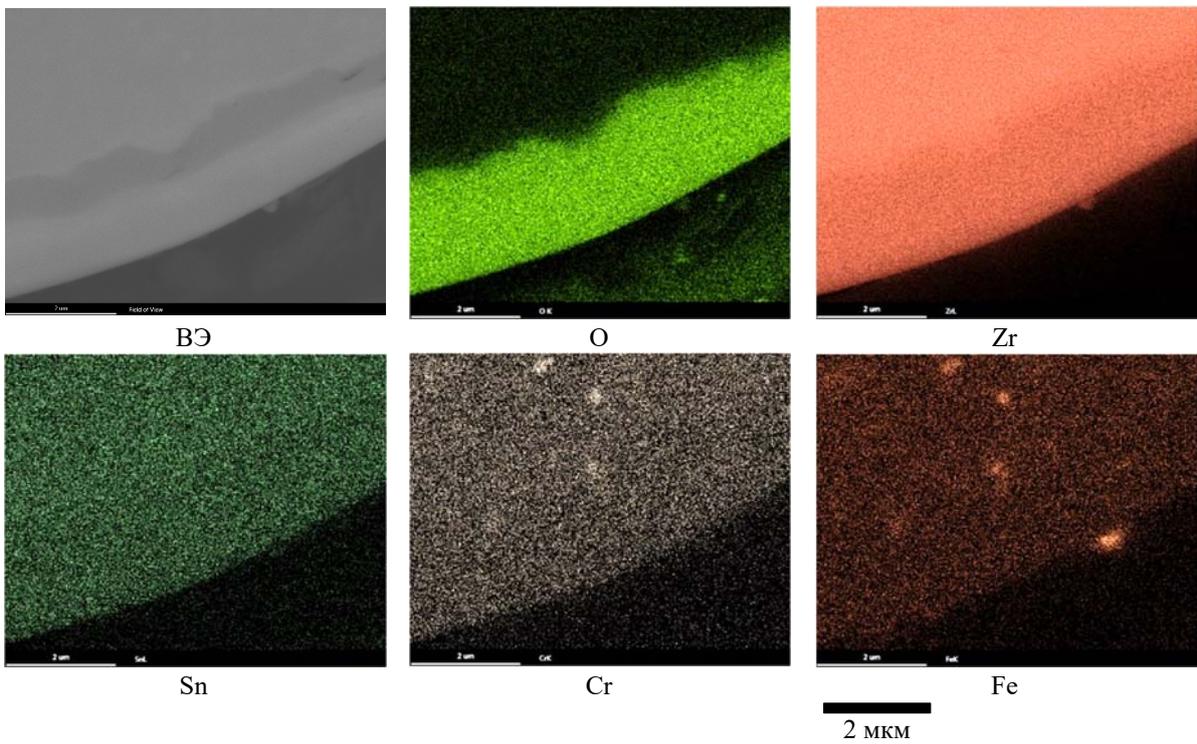
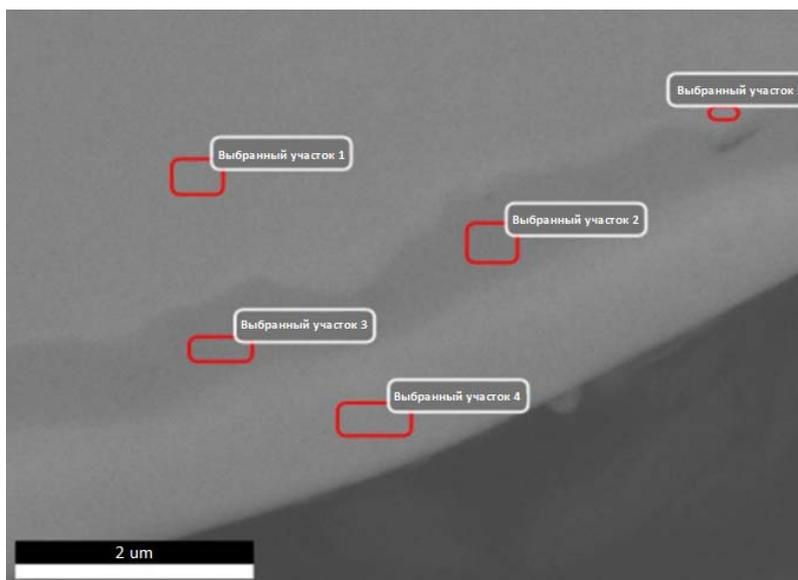


РИС. 21. СЭМ-ЭДС картирование, показывающее распределение O, Zr, Sn и Fe в эталонном образце из Zry-4 от ТИК (63 дня).



	O K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe L	Ni K
Выбранный участок 1	1,8	95,8	1,4	—	0,5	0,5
Выбранный участок 2	24,7	72,6	1,2	0,4	0,8	0,3
Выбранный участок 3	24,2	73,0	1,1	0,4	1,0	0,4
Выбранный участок 4	25,9	71,8	1,1	—	0,6	0,6
Выбранный участок 5	12,6	85,0	1,4	—	0,6	0,5

РИС. 22. Определенный методом СЭМ-ЭДС химический состав (масс.%) эталонного образца из Zry-4 от ТИК после 63-суточного воздействия. Для количественного анализа использовались линии K- и L- серий рентгеновского излучения.

3.6.2. Zry-2 с PVD Cr покрытием

Морфология образца из Zry-2 от ЧТУ с PVD Cr покрытием, который подвергался воздействию в течение 21 суток, показана на рис. 23. Толщина покрытия колебалась от приблизительно 20 мкм до 30 мкм. Покрытие было непрерывным, но были обнаружены сквозные трещины в покрытии и трещины между покрытием и подложкой.

На рис. 24 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Zr, Sn и Ni, на которых покрытие находится сверху. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 25. Явного окисления Zr подложки под покрытием не наблюдается.

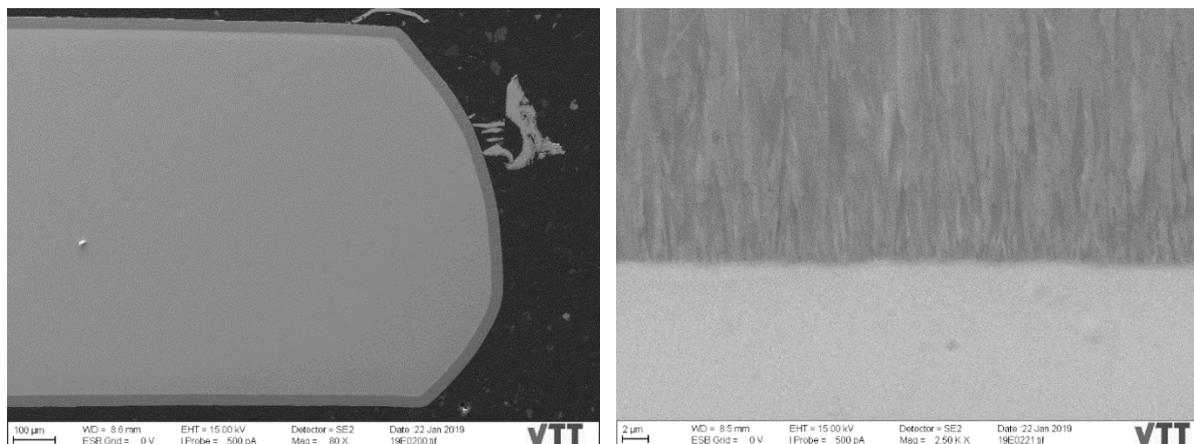


РИС. 23. ВЭ-изображения образца из Zry-2 от ЧТУ с Cr покрытием (21-суточное воздействие).

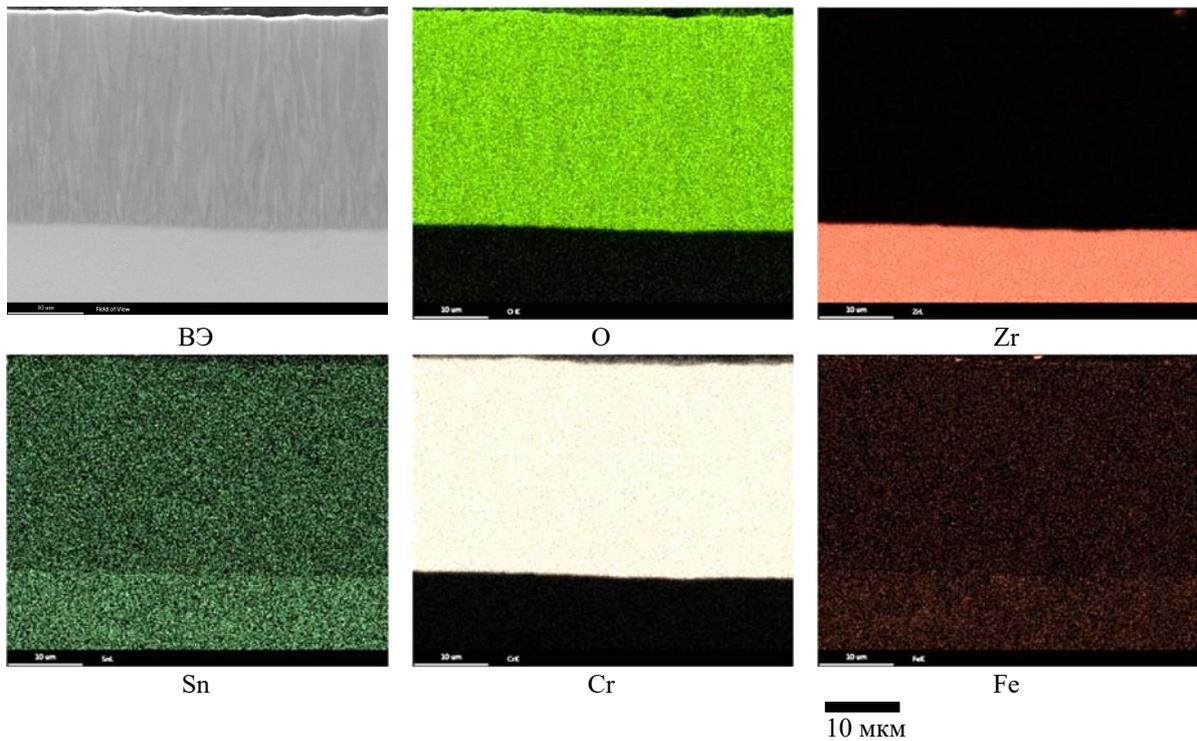
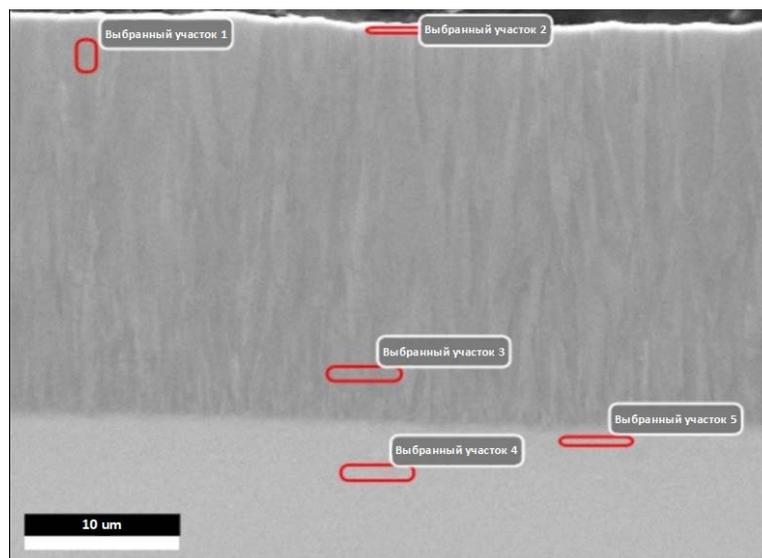


РИС. 24. СЭМ-ЭДС картирование, показывающее распределение O, Zr, Sn, Cr и Fe в образце из Zry-2 от ЧТУ с Cr покрытием (21-суточное воздействие).



	O K	Al K	Si K	Zr L	Sn L	Ti K	Cr K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	3,2	—	—	—	0,1	—	95,7	0,6	0,4
Выбранный участок 2	6,6	0,1	0,2	—	0,2	—	67,7	1,3	0,5
Выбранный участок 3	3,4	—	0,2	—	0,1	0,2	95,4	0,4	0,4
Выбранный участок 4	2,0	—	—	93,5	1,5	—	1,3	0,9	0,8
Выбранный участок 5	1,9	—	—	92,7	1,4	—	2,6	0,9	0,6

РИС. 25. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца из Zry-2 от ЧТУ с Cr покрытием (21-суточное воздействие). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

Морфология образца из Zry-4 от ЧТУ с Cr покрытием, который подвергался воздействию в течение 42 суток, показана на рис. 26. Толщина покрытия колебалась от приблизительно 20 мкм до 30 мкм. Покрытие было непрерывным, но были обнаружены сквозные трещины в покрытии и трещины между покрытием и подложкой.

На рис. 27 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Zr, Sn, Cr и Fe, на которых покрытие находится сверху. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 28 (примечание: изображение перевернуто по сравнению с изображениями на рис. 27 и рис. 28). В покрытии видна трещина. Однако это не привело к окислению находящейся под ним Zr подложки.

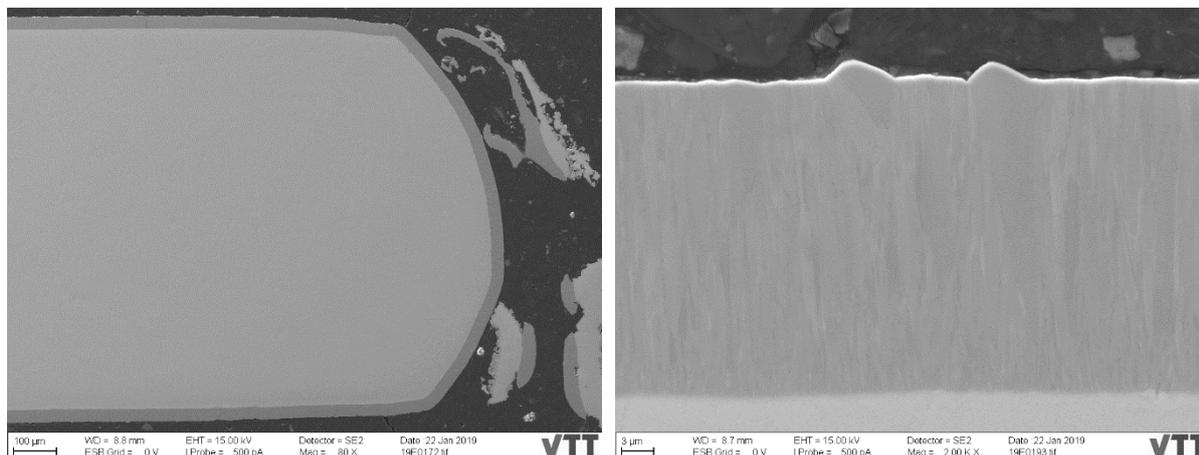


РИС. 26. ВЭ-изображения образца из Zry-2 от ЧТУ с Cr покрытием (42-суточное воздействие).

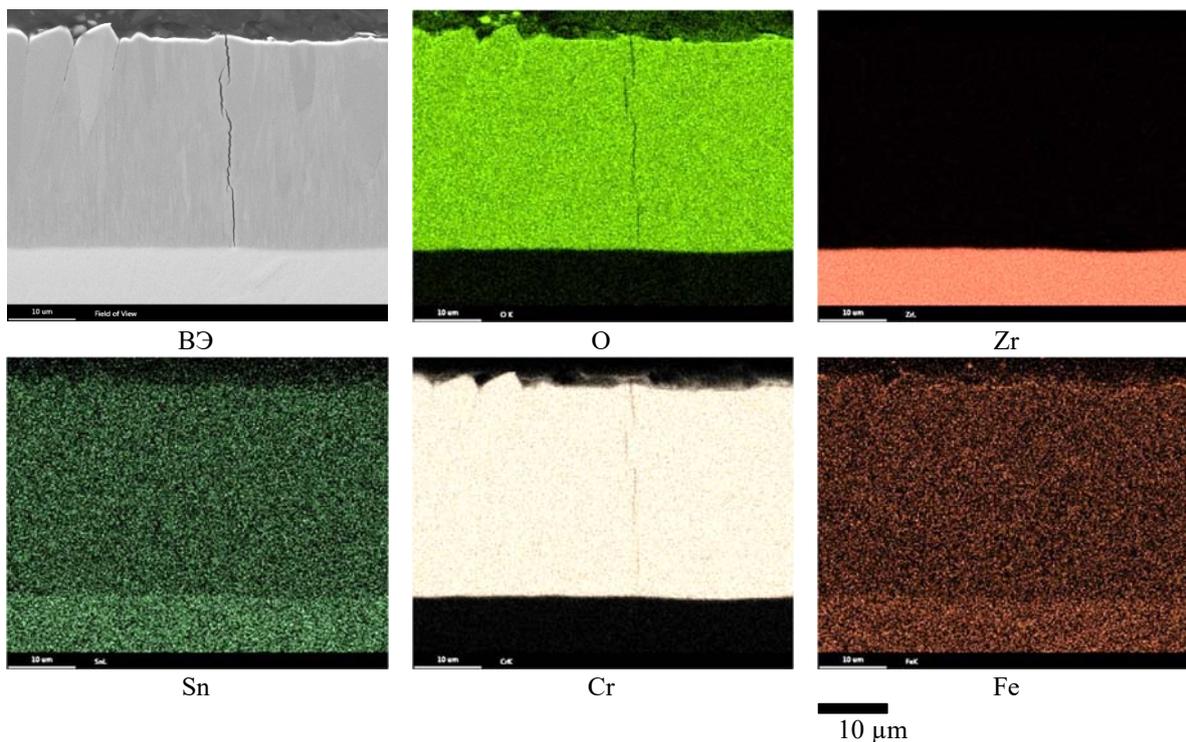
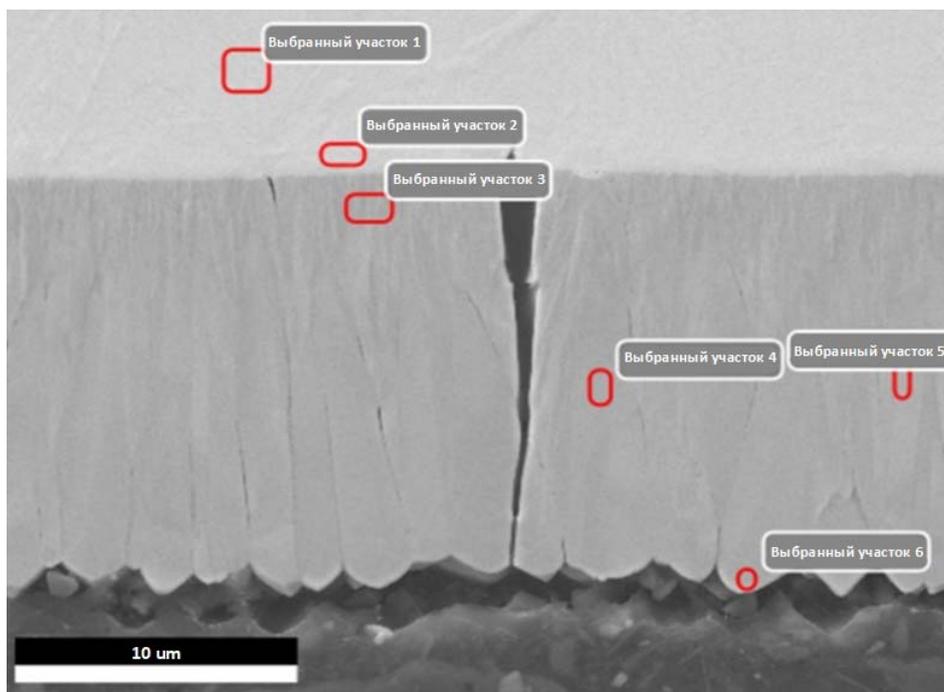


РИС. 27. СЭМ-ЭДС картирование, показывающее распределение O, Zr, Sn, Cr и Fe в образце из Zry-2 от ЧТУ с Cr покрытием (42-суточное воздействие).



	O K	Si K	Zr L	Sn L	Ti K	Cr K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	2,2	—	94,9	1,5	—	0,5	0,5	0,4
Выбранный участок 2	1,9	—	93,8	1,3	—	1,8	0,6	0,5
Выбранный участок 3	3,3	—	—	0,1	0,2	95,6	0,5	0,3
Выбранный участок 4	3,0	—	—	0,1	—	96,5	0,5	—
Выбранный участок 5	3,1	—	—	0,1	—	95,9	0,5	0,3
Выбранный участок 6	3,0	0,1	—	0,1	—	96,0	0,6	0,2

РИС. 28. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца из ZrO₂ от ЧТУ с Cr покрытием (42 дня). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

Морфология образца из ZrO₂ от ЧТУ с Cr покрытием, который подвергался воздействию в течение 63 суток, показана на рис. 29. Толщина покрытия колебалась от приблизительно 20 мкм до 30 мкм. Покрытие было непрерывным, но были обнаружены сквозные трещины в покрытии и трещины между покрытием и подложкой, в основном на более острых краях.

На рис. 30 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Zr, Sn, Cr и Fe. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 31.

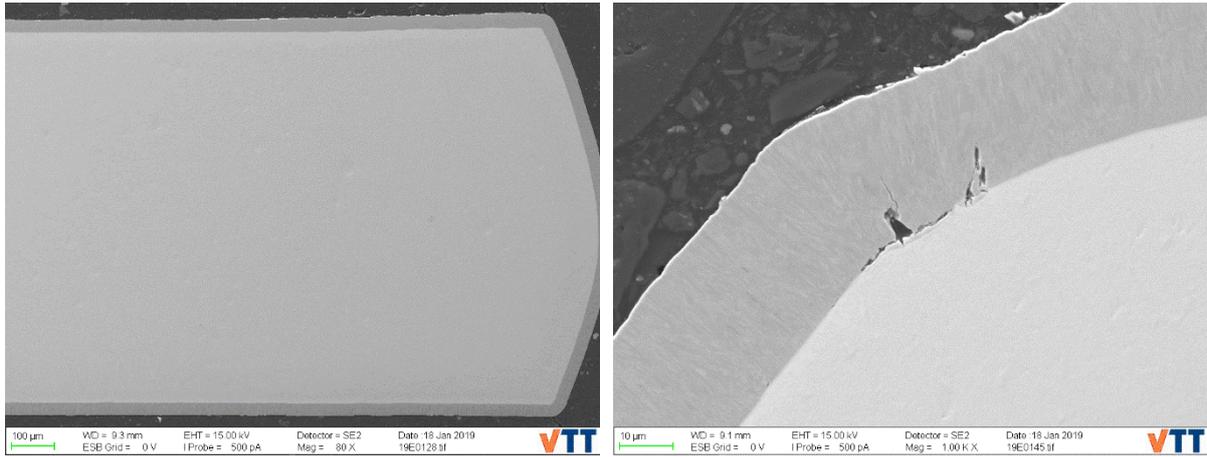


РИС. 29. ВЭ-изображения образца из ZrO_2 от ЧТУ с Cr покрытием (63-суточное воздействие).

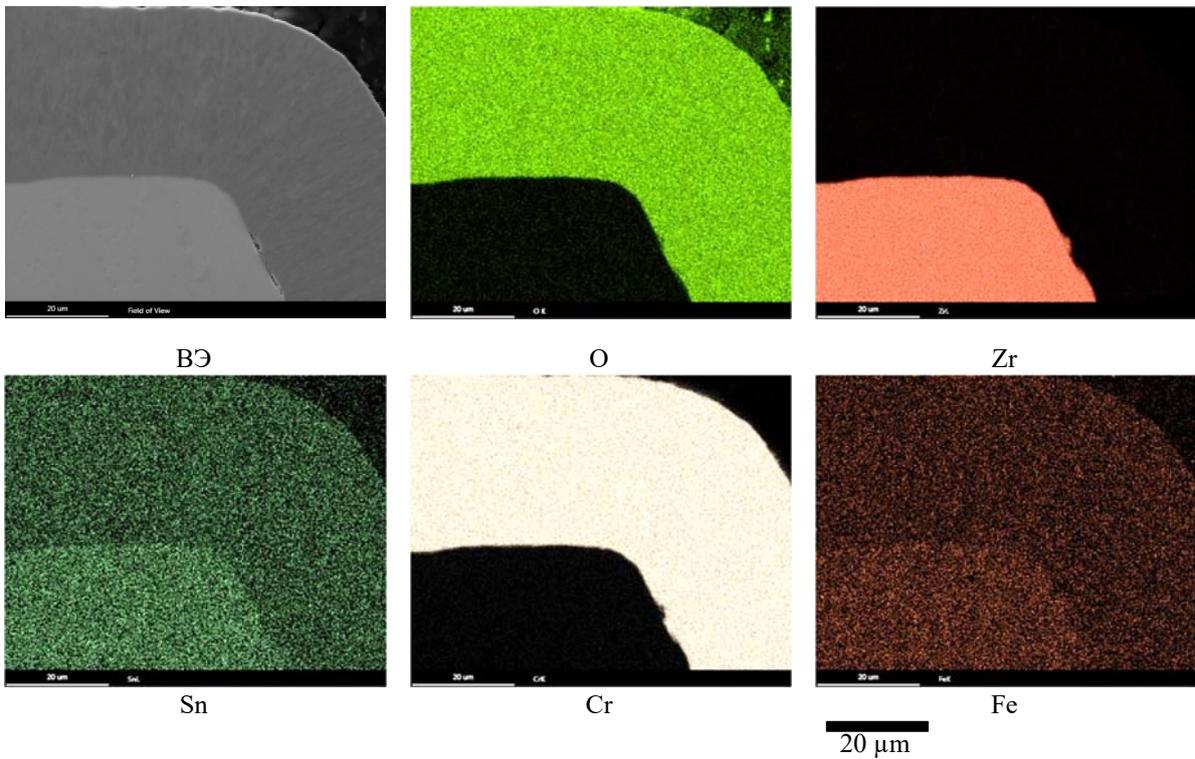
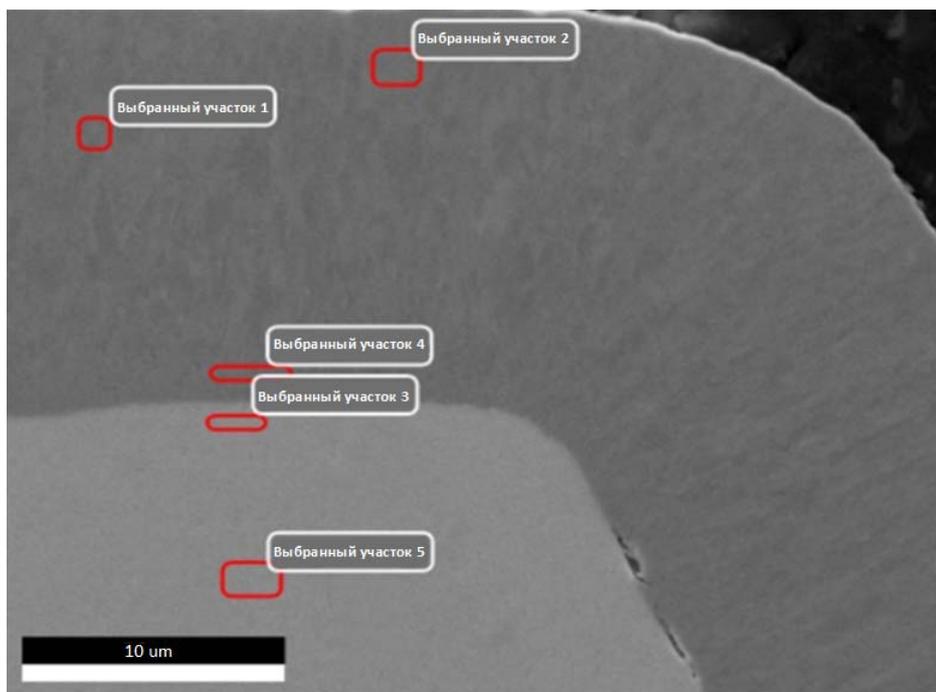


РИС. 30. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Zr, Sn, Cr и Fe в образце из ZrO_2 от ЧТУ с Cr покрытием (63-суточное воздействие).



	O K	Ni L	Si K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K
Выбранный участок 1	3,1	0,1	0,1	—	0,2	96,0	0,5
Выбранный участок 2	3,1	0,2	0,1	—	0,1	96,0	0,5
Выбранный участок 3	1,7	0,5	—	94,6	1,5	1,8	—
Выбранный участок 4	3,1	0,3	0,2	—	0,2	96,0	0,3
Выбранный участок 5	1,9	0,3	—	95,9	0,7	0,5	0,7

РИС. 31. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца из Zry-2 от ЧТУ с Cr покрытием (63-суточное воздействие). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

3.6.3. Zry-4 с PVD Cr/Cr₂AlC/Cr покрытием (MAX-фаза)

На рис. 32 показана морфология образца из Zry-4 с покрытием MAX-фаза (Cr₂AlC), который подвергался воздействию в течение 21 суток. Толщина покрытия колебалась от приблизительно 0,5 мкм до 5 мкм. Покрытие не было непрерывным и частично отслоилось во время подготовки образца. Были обнаружены сквозные трещины в покрытии и трещины между покрытием и подложкой.

На рис. 33 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni, на которых слой оксида находится слева. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 34. По краям покрытие отсутствует и подвергшийся воздействию Zr окислился. Участок, снабженный покрытием, был защищен от окисления.

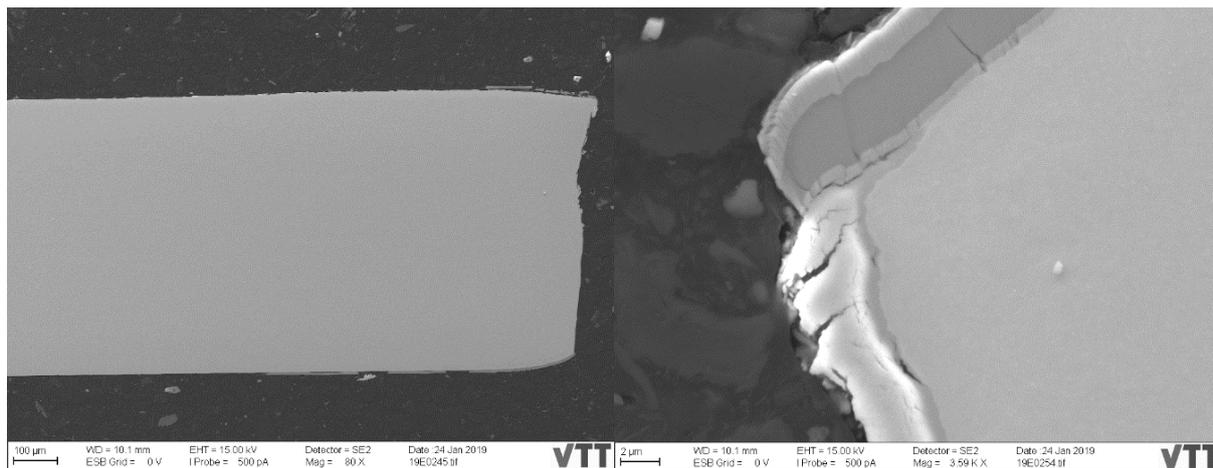


Рис. 32. ВЭ-изображения образца из Zr-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr_2AlC) (21-суточное воздействие).

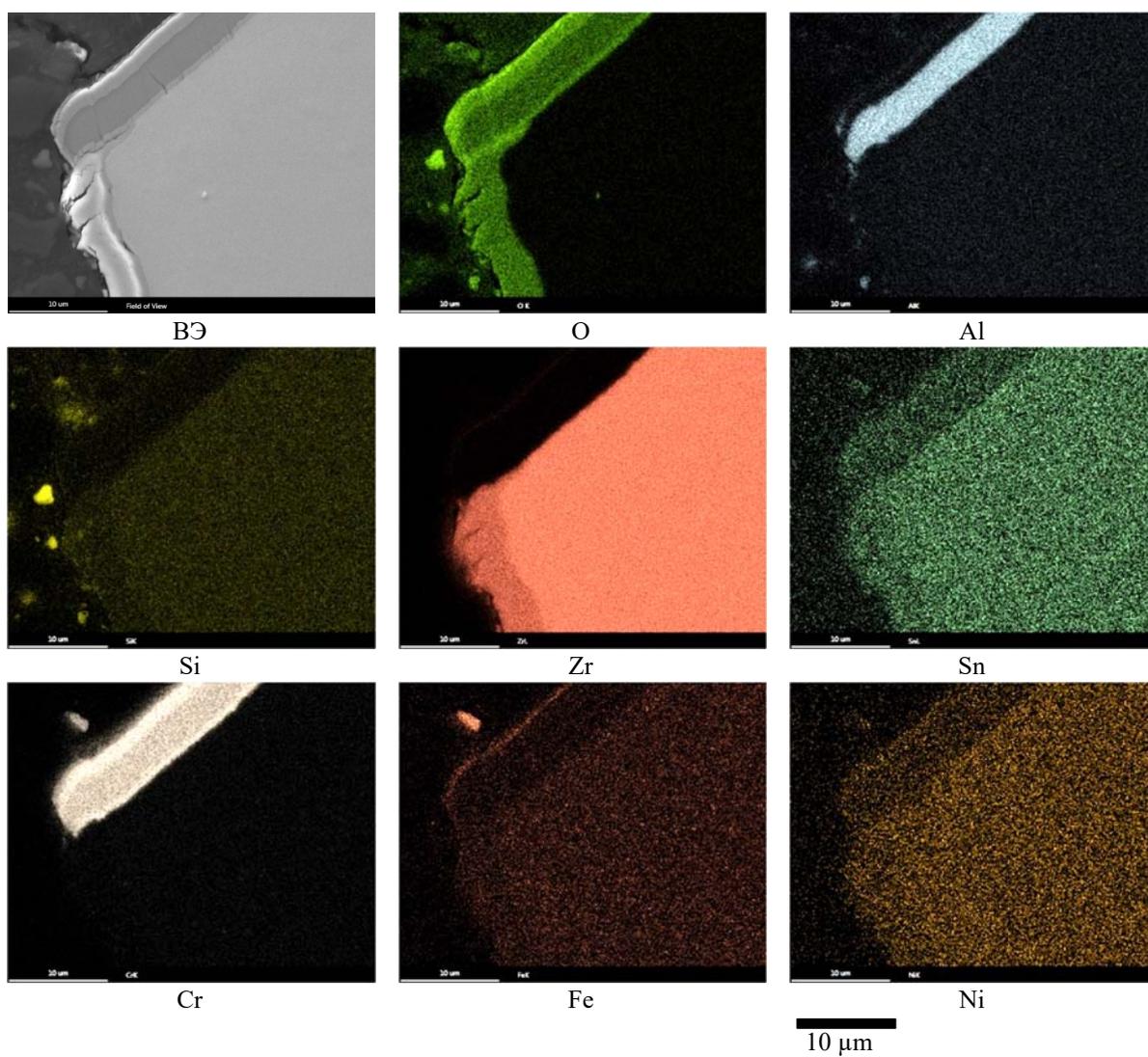
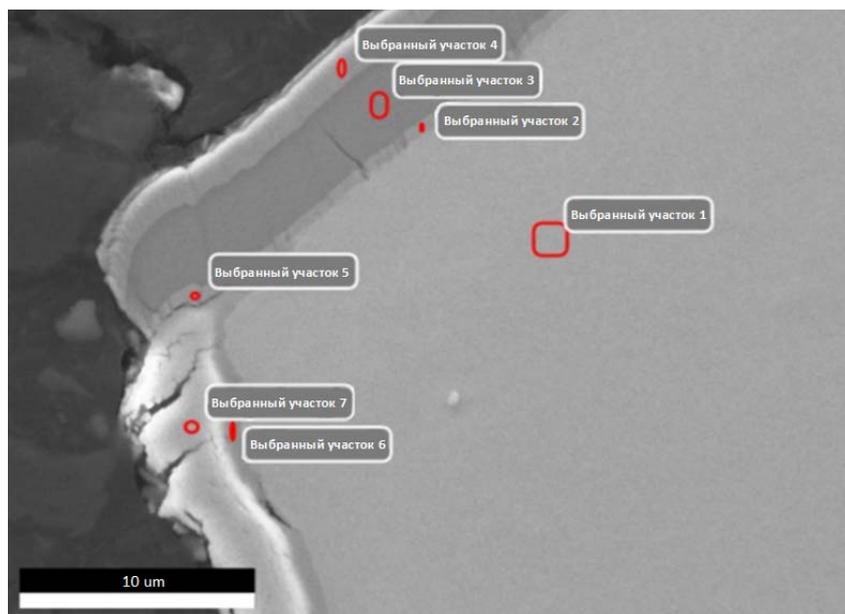


Рис. 33. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni в образце из Zr-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr_2AlC) (21-суточное воздействие).



	O K	Al K	Si K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	1,8	—	—	94,1	1,7	1,2	1,3	—
Выбранный участок 2	2,8	8,0	—	1,7	0,2	86,5	0,6	—
Выбранный участок 3	2,4	18,6	—	—	0,2	78,1	0,4	—
Выбранный участок 4	4,2	0,2	—	0,3	0,2	94,1	0,8	—
Выбранный участок 5	4,1	2,8	0,3	1,9	0,3	89,9	0,7	—
Выбранный участок 6	25,4	—	—	71,0	—	0,7	0,9	0,8
Выбранный участок 7	27,3	—	—	70,1	1,1	0,6	1,0	—

РИС. 34. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца из ZrO₂-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC) (21-суточное воздействие). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

На рис. 35 показана морфология образца из ZrO₂-4 с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC), который подвергся воздействию в течение 42 суток. Толщина покрытия колебалась от приблизительно 3 мкм до 10 мкм. Как и на предыдущих образцах, покрытие не было непрерывным и частично отслоилось во время подготовки образца. Были обнаружены сквозные трещины в покрытии и трещины между покрытием и подложкой.

На рис. 36 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni, на которых слой оксида находится слева. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 37. На короткой стороне образца окисление проникло через покрытие к Zr подложке.

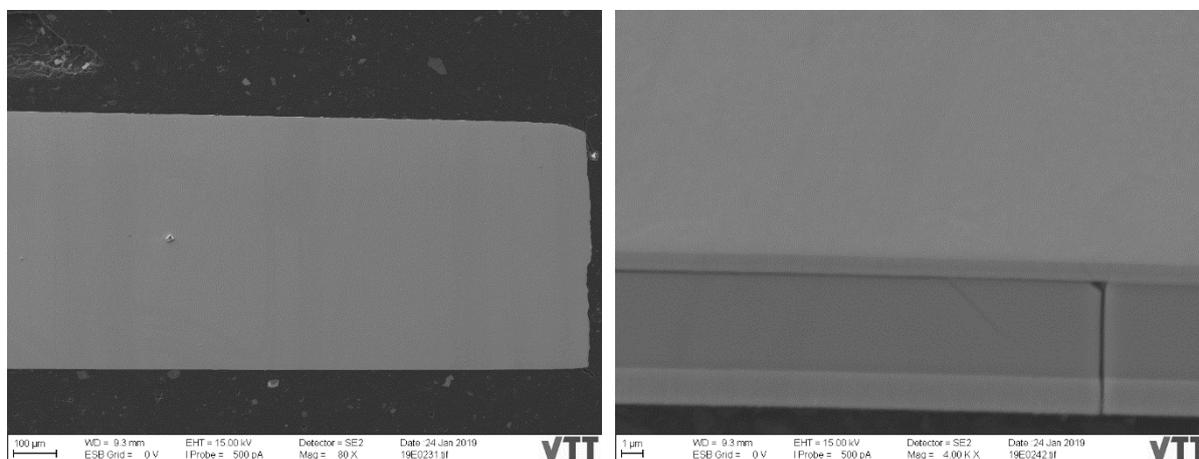


РИС. 35. ВЭ-изображения образца из ZrO₂-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC) (42-суточное воздействие).

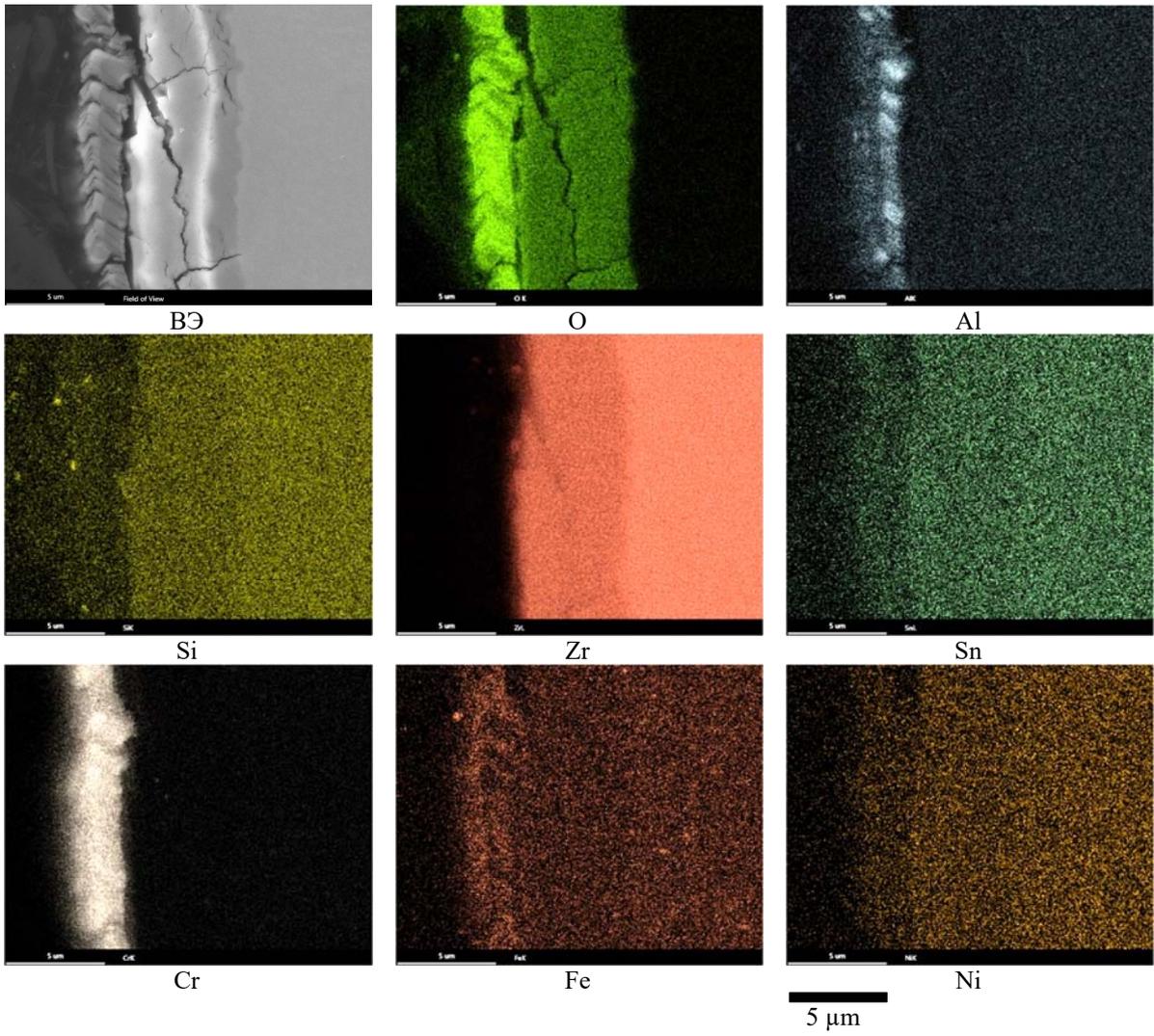
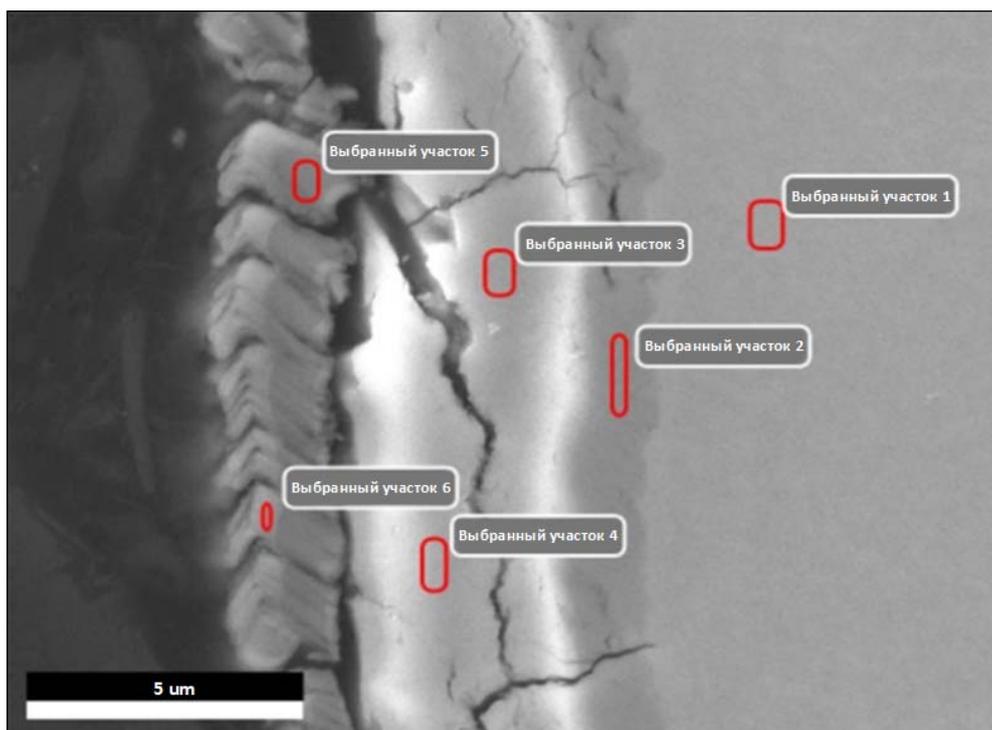


РИС. 36. СЭМ-ЭДС картирование, показывающее распределение O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni в образце из Zry-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr_2AlC) (42-суточное воздействие).



	O K	Al K	Si K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	1,9	—	—	95,0	1,8	—	1,4	—
Выбранный участок 2	24,7	—	—	70,7	1,3	0,9	1,4	1,0
Выбранный участок 3	26,4	—	—	69,7	1,4	1,1	1,5	—
Выбранный участок 4	26,1	—	—	68,7	1,5	1,2	1,5	1,1
Выбранный участок 5	9,5	12,0	0,4	—	0,1	75,6	1,7	0,5
Выбранный участок 6	13,6	1,9	0,3	—	0,2	71,7	2,3	0,8

РИС. 37. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца из ZrO₂-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC) (42-суточное воздействие). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

Морфология образца из ZrO₂-4 с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC), который подвергался воздействию в течение 63 суток, показана на рис. 38. Толщина покрытия колебалась от приблизительно 2 мкм до 40 мкм. Покрытие не было непрерывным и частично отслоилось во время подготовки образца. Были обнаружены сквозные трещины в покрытии и трещины между покрытием и подложкой. При сравнении результатов воздействия в течение 63 суток и 21 суток, на образце, который подвергался воздействию в течение 63 суток, осталось меньшее количество покрытия.

На рис. 39 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 40. Во время воздействия большая часть покрытия отделилась от поверхности образца, и обнаженная подложка впоследствии окислилась, как показано на рис. 39 и 40.

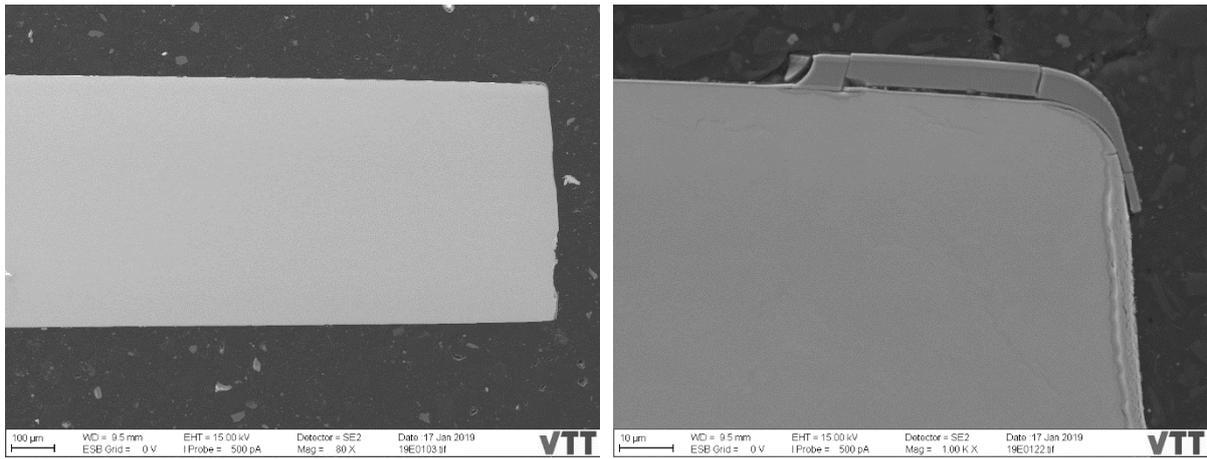


Рис. 38. ВЭ-изображения образца из ZrO₂-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC) (63 дня).

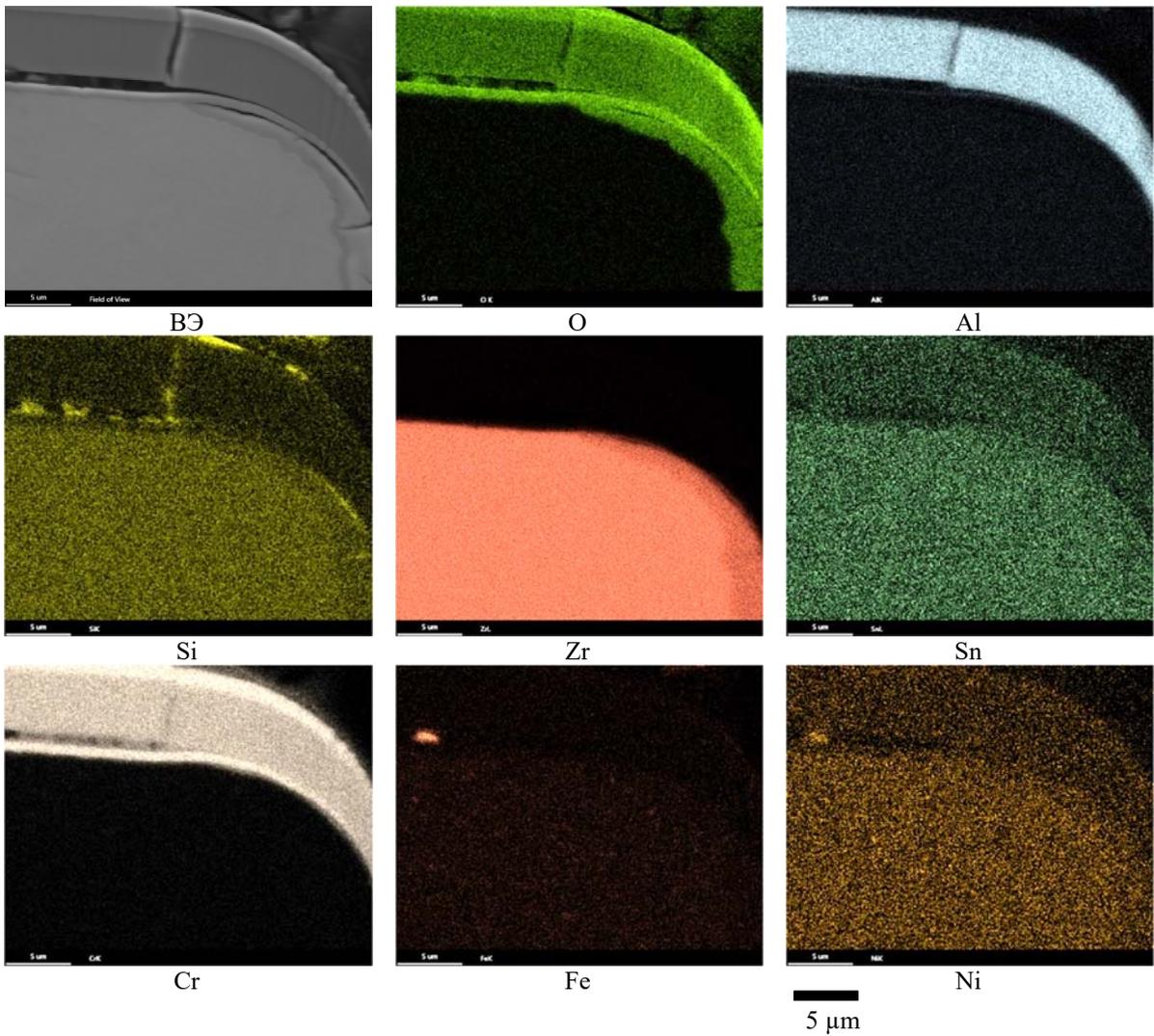
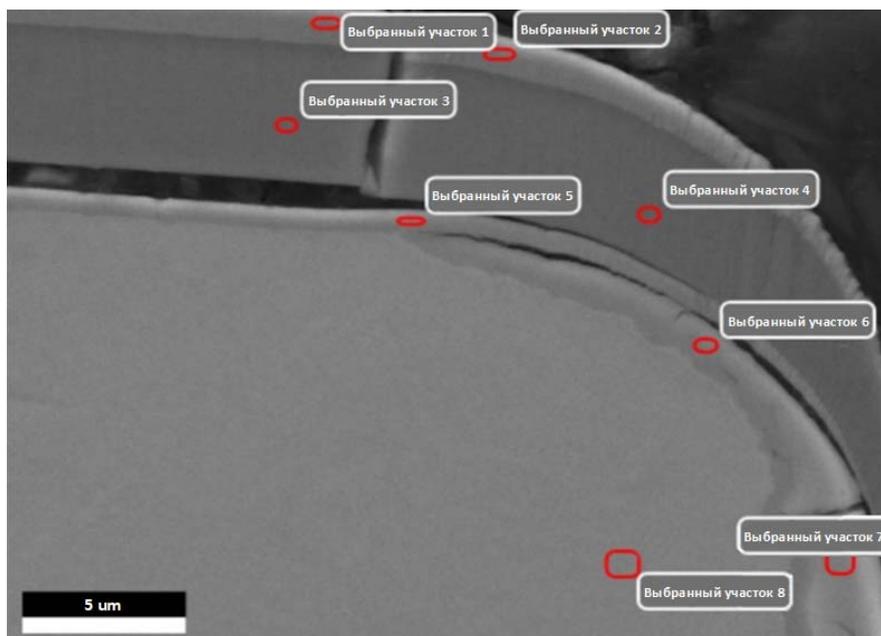


Рис. 39. СЭМ-ЭДС картирование, показывающее распределение O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni в образце из ZrO₂-4 от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC) (63-суточное воздействие).



	O K	Ni L	Al K	Si K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K
Выбранный участок 1	3,2	0,3	0,4	0,5	—	0,1	95,2	0,4
Выбранный участок 2	4,1	0,2	0,3	0,9	—	0,2	93,9	0,4
Выбранный участок 3	2,2	0,2	20,8	0,3	—	0,2	76,1	0,2
Выбранный участок 4	4,8	0,1	21,3	0,4	0,4	0,1	72,7	0,2
Выбранный участок 5	4,0	0,2	0,9	0,5	2,2	0,1	91,9	0,3
Выбранный участок 6	25,1	0,1	0,1	—	68,7	1,1	3,8	1,1
Выбранный участок 7	26,2	0,5	—	—	71,3	1,0	0,6	0,4
Выбранный участок 8	1,9	0,4	—	—	95,6	1,5	—	0,6

РИС. 40. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца из ZrO₂ от ТИК с покрытием МАХ-фаза (Cr₂AlC) (63-суточное воздействие). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

3.6.4. ZrO₂ с PVD ZrSi-Cr покрытием

Морфология образца из ZrO₂ от ИЯХТ с ZrSi-Cr покрытием, который подвергся воздействию в течение 16,5 суток, показана на рис. 41. Толщина оксидного слоя колебалась от приблизительно 2 мкм до 10 мкм. Слой не был непрерывным и частично отделился от подложки во время подготовки образца. Были обнаружены сквозные трещины в оксидном слое и трещины между оксидным слоем и подложкой.

На рис. 42 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni, на которых слой оксида находится слева. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 43. Как показывают карты распределения O и Zr на рис. 42, слой оксида явно поврежден. Содержание кислорода в циркониевой подложке под оксидным слоем увеличилось.

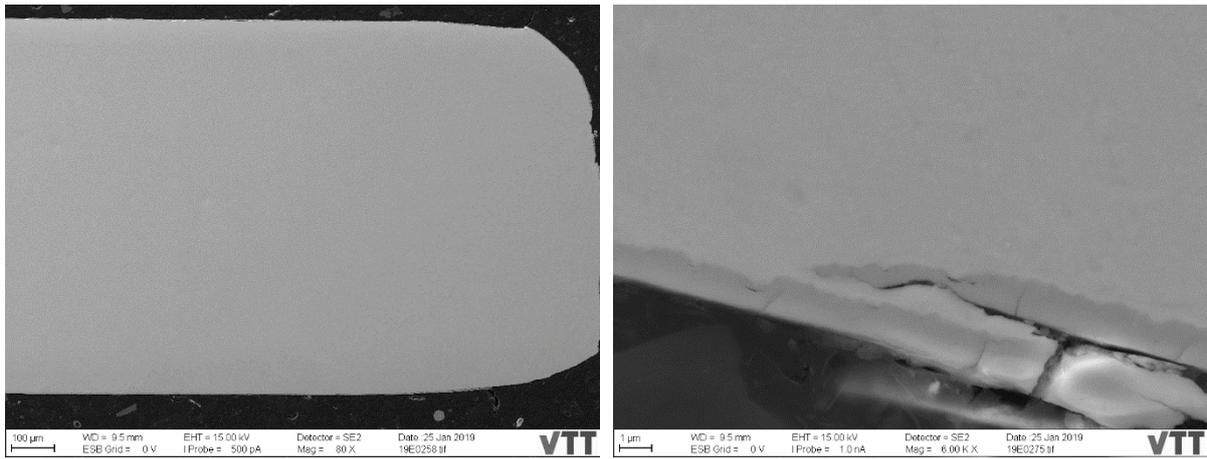


Рис. 41. ВЭ-изображения образца из Zr-2 от ИЯХТ с ZrSi-Cr покрытием (16,5-суточное воздействие).

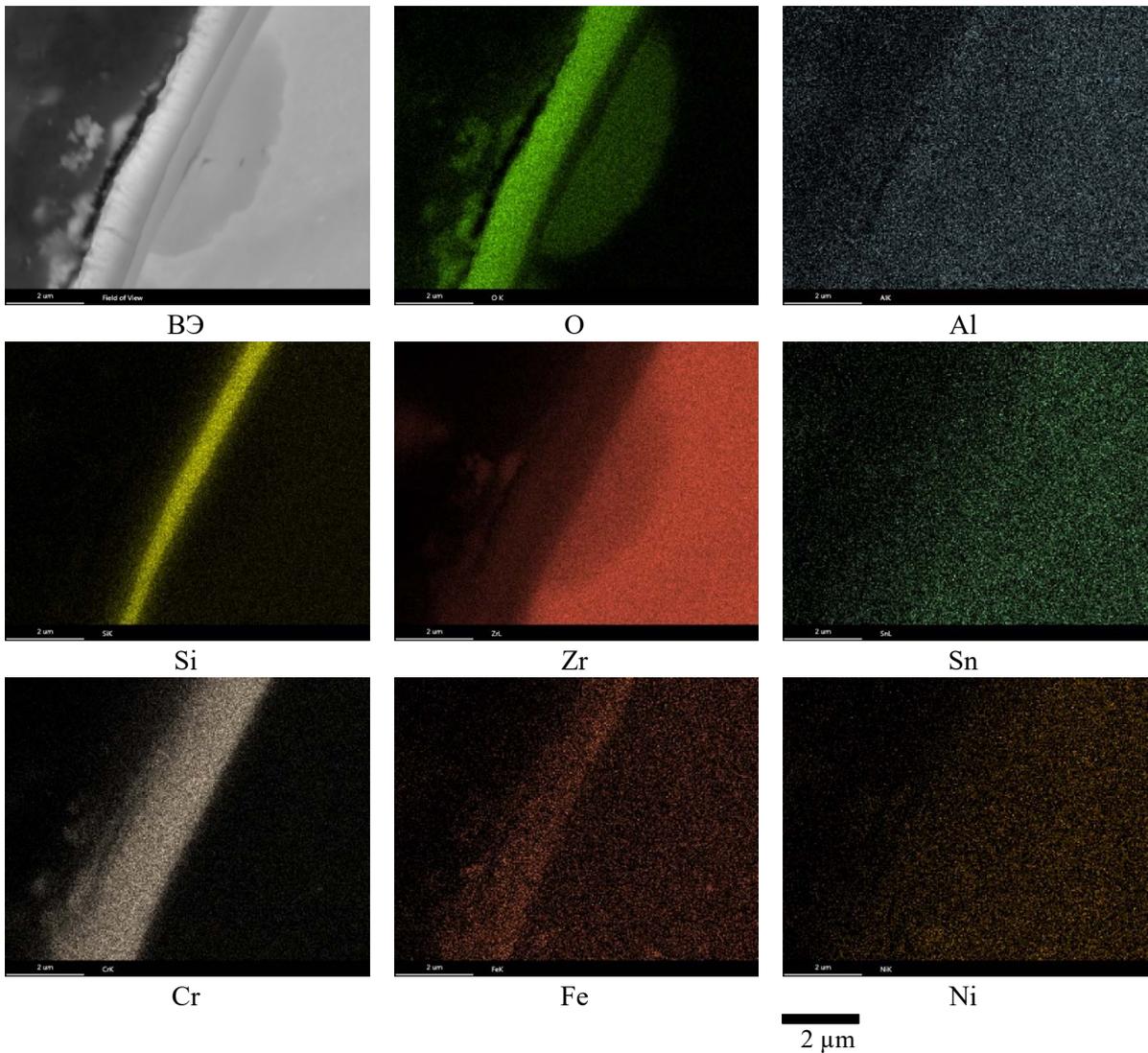


Рис. 42. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Al, Si, Zr, Sn, Cr, Fe и Ni в образце из Zr-2 от ИЯХТ с ZrSi-Cr покрытием (16,5-суточное воздействие).



	O K	Ni L	Al K	Si K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K
Выбранный участок 1	1,8	1,1	—	—	94,0	0,8	0,9	1,4
Выбранный участок 2	25,8	0,7	—	—	71,4	0,7	0,5	0,9
Выбранный участок 3	4,7	0,6	—	28,6	31,5	0,2	33,7	0,7
Выбранный участок 4	27,8	—	0,1	1,1	27,4	—	31,4	9,0
Выбранный участок 5	13,7	—	—	17,0	25,1	—	44,3	—
Выбранный участок 6	27,8	—	—	—	69,8	1,1	0,4	0,7

РИС. 43. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) образца из ZrY-2 от ИЯХТ с ZrSi-Cr покрытием после 16,5-суточного воздействия. Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

3.6.5. Нержавеющая сталь марки AISI 348

Морфология образца AISI 348, который подвергался воздействию в течение 63 суток, показана на рис. 44. Для образцов, подвергавшихся воздействию в течение 21 и 42 суток, данные анализа среза/элементного состава не представлены здесь ввиду незначительного окисления образцов. Оксидный слой на образце, подвергавшемся воздействию в течение 63 суток, не был непрерывным, и большая его часть отслоилась во время подготовки образца. Местами на поверхности тонкого оксидного слоя наблюдались слои металла, возможно, являвшиеся результатом первоначальной механической обработки поверхности. В целом, толщина этих локальных областей слоя оксида составляла около 1 мкм, как показано на рис. 44.

На рис. 45 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Nb, Cr, Mn, Fe и Ni, на которых слой оксида находится слева. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 46. На рис. 46 картирование Nb показывает наличие частиц Nb (карбидостабилизирующего элемента).

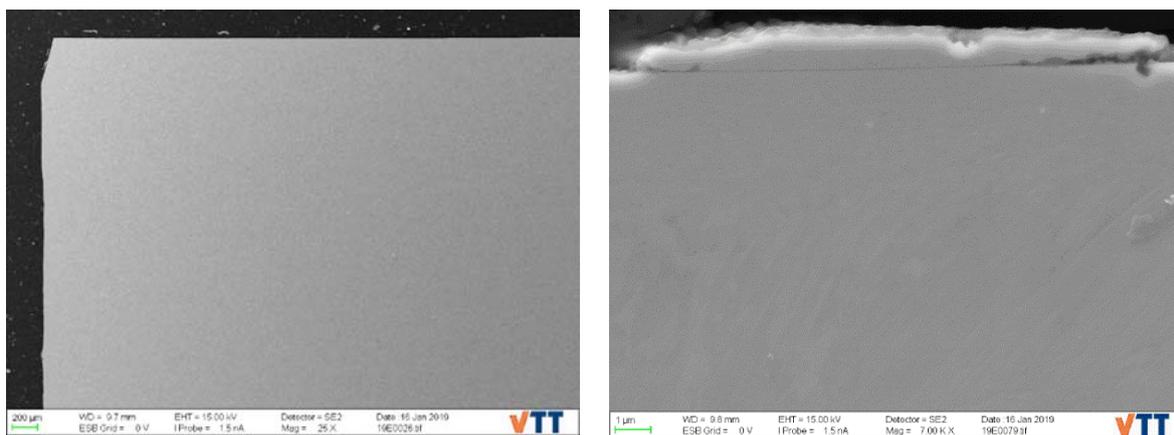


РИС. 44. ВЭ-изображения образца AISI 348 (63 дня).

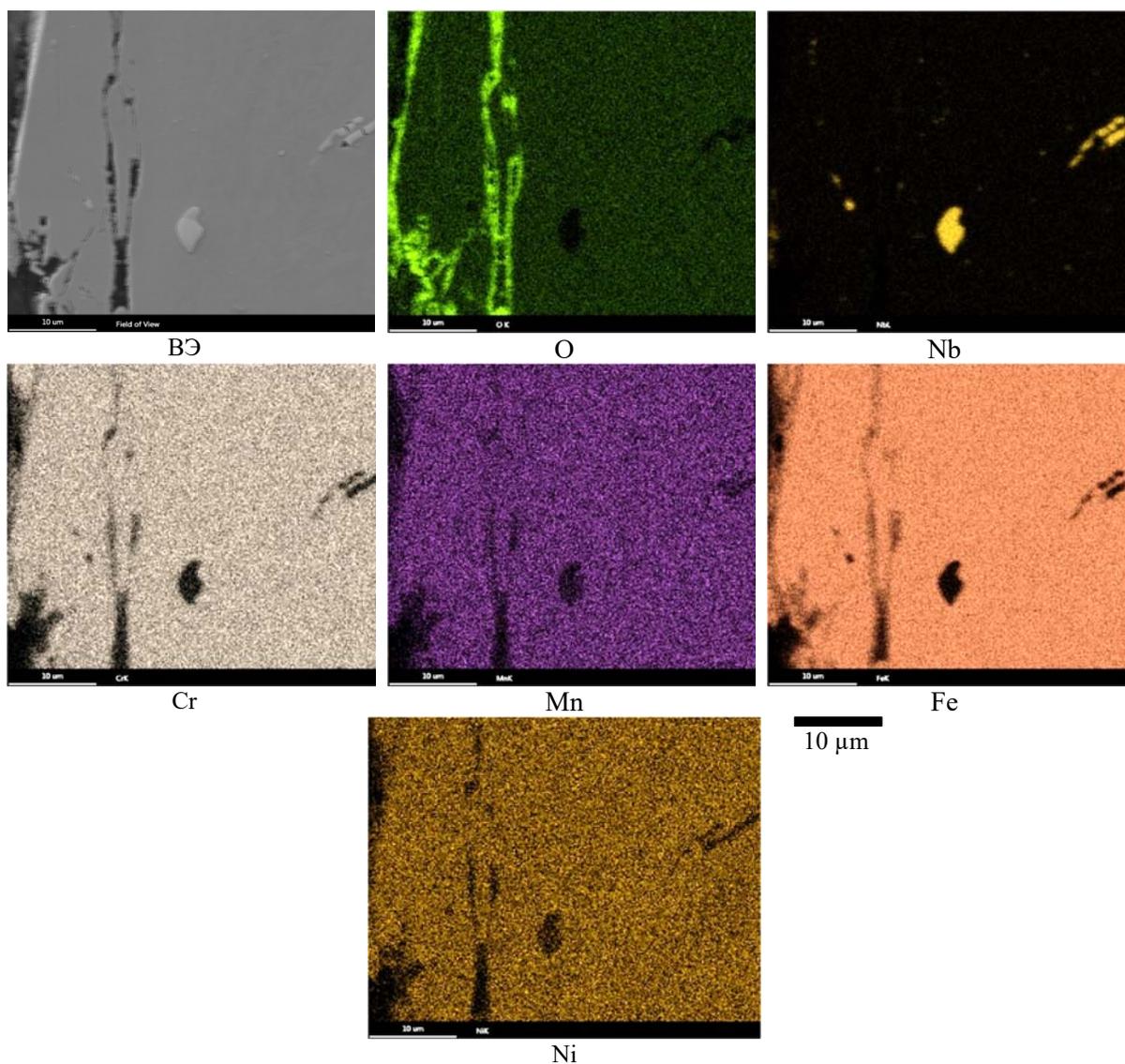
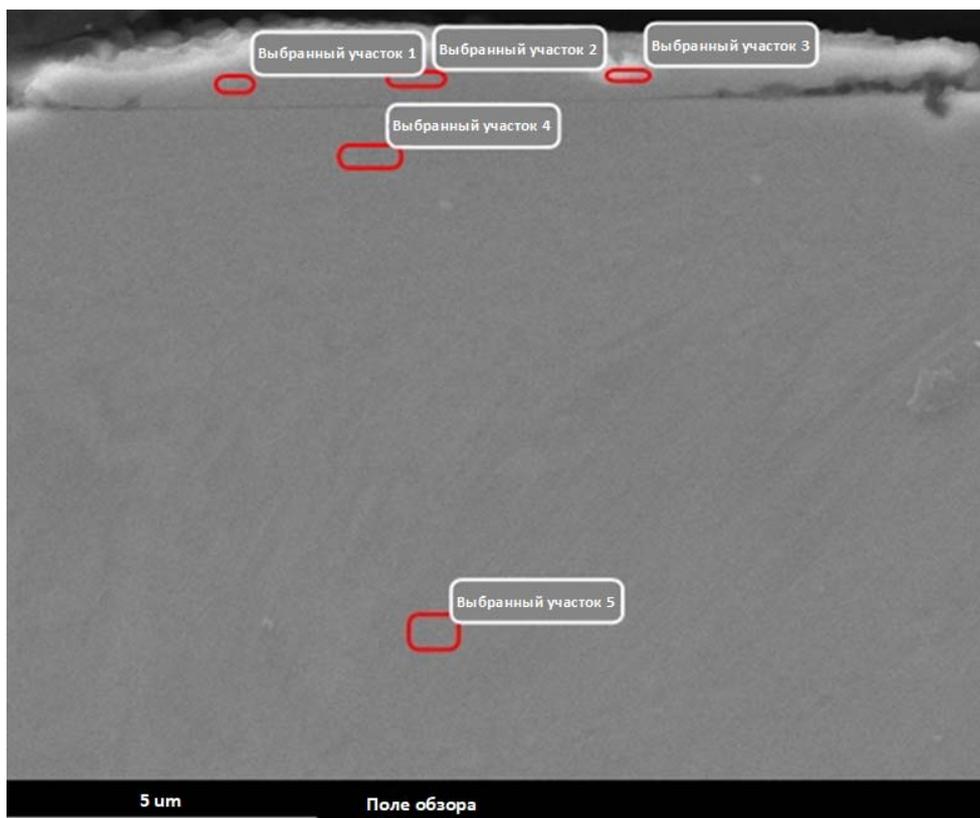


РИС. 45. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Nb, Cr, Mn, Fe и Ni в образце AISI 348 (63 дня).



	O K	Al K	Si K	Nb L	Cr K	Mn K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	—	0,1	0,6	0,4	17,0	1,7	71,1	9,1
Выбранный участок 2	—	—	0,6	0,4	17,0	2,0	71,0	9,1
Выбранный участок 3	6,2	—	0,4	43,3	9,7	—	36,0	4,5
Выбранный участок 4	—	—	0,6	1,7	17,1	2,1	69,8	8,7
Выбранный участок 5	—	—	0,6	0,4	17,0	2,0	70,1	9,1

РИС. 46. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) образца из AISI 348 после 63-суточного воздействия. Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

3.7. РЕЗУЛЬТАТЫ: ИЯХТ

3.7.1. Сплавы на основе Zr без покрытия: эталонные образцы

Результаты визуального осмотра образцов из Zry-2 до и после испытания показаны на рис. 47. Цвет поверхности образцов не изменился – он оставался серым, но темнел в ходе продолжения испытания.

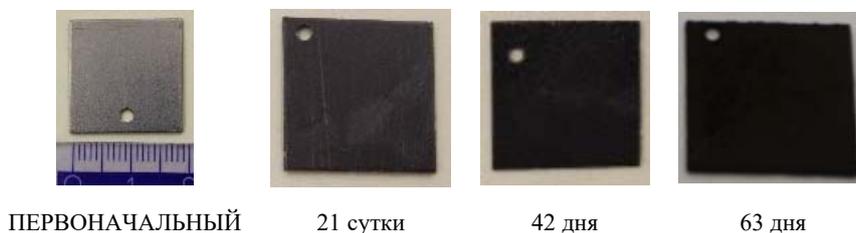


РИС. 47. Общий вид образцов из Zry-2 во время испытания на коррозию.

На рис. 48 показаны СЭМ-микрофотографии образцов. Шероховатость поверхности увеличивалась по мере окисления образца. Были видны волокнистые, игольчатые и пластинчатые оксиды. На изображении с более высоким увеличением видны игольчатые структуры и пластинчатые агломераты оксидов, образовавшиеся после 63 суток.

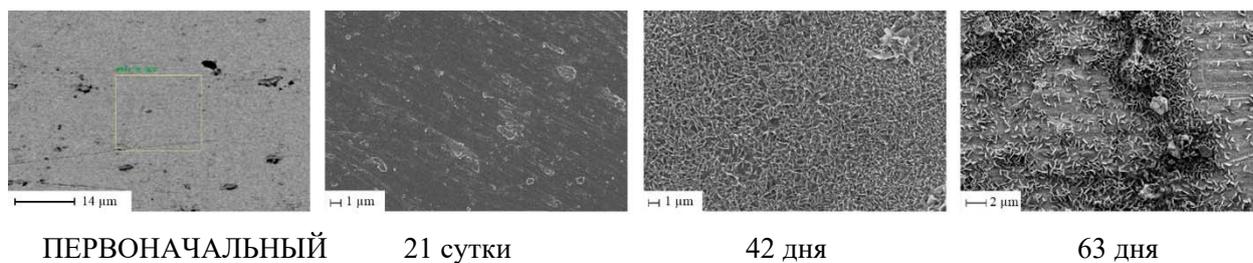


РИС. 48. СЭМ-микрофотографии образца из ZrO₂ во время испытания; увел. 1000X.

Было видно, что после 21, 42 и 63 суток испытания в автоклаве образовался слой оксида. Элементный анализ показал, что оксидный слой содержал только цирконий и кислород, как видно на СЭМ-снимках среза на рис. 49.

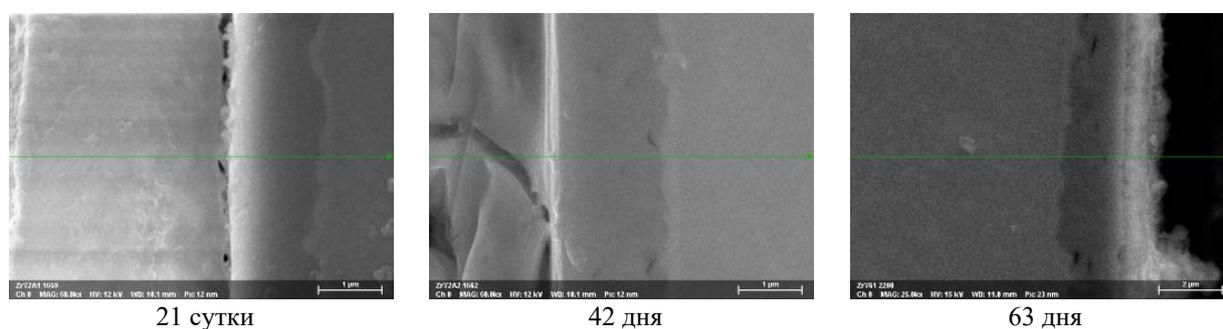


РИС. 49. Срез ZrO₂ через 21, 42 и 63 дня (СЭМ).

В таблице 18 представлены данные по привесу массы.

ТАБЛИЦА 18. ПРИВЕС МАССЫ ОБРАЗЦА ИЗ ZrO₂

	21 сутки	42 дня	63 дня
Изменение массы поверхностного слоя [%]	2,79	4,209	5,313

Наличие Zr в гексагональной структуре было подтверждено РД анализом фаз. После воздействия было подтверждено наличие в моноклинной структуре фазы оксида циркония ZrO₂.

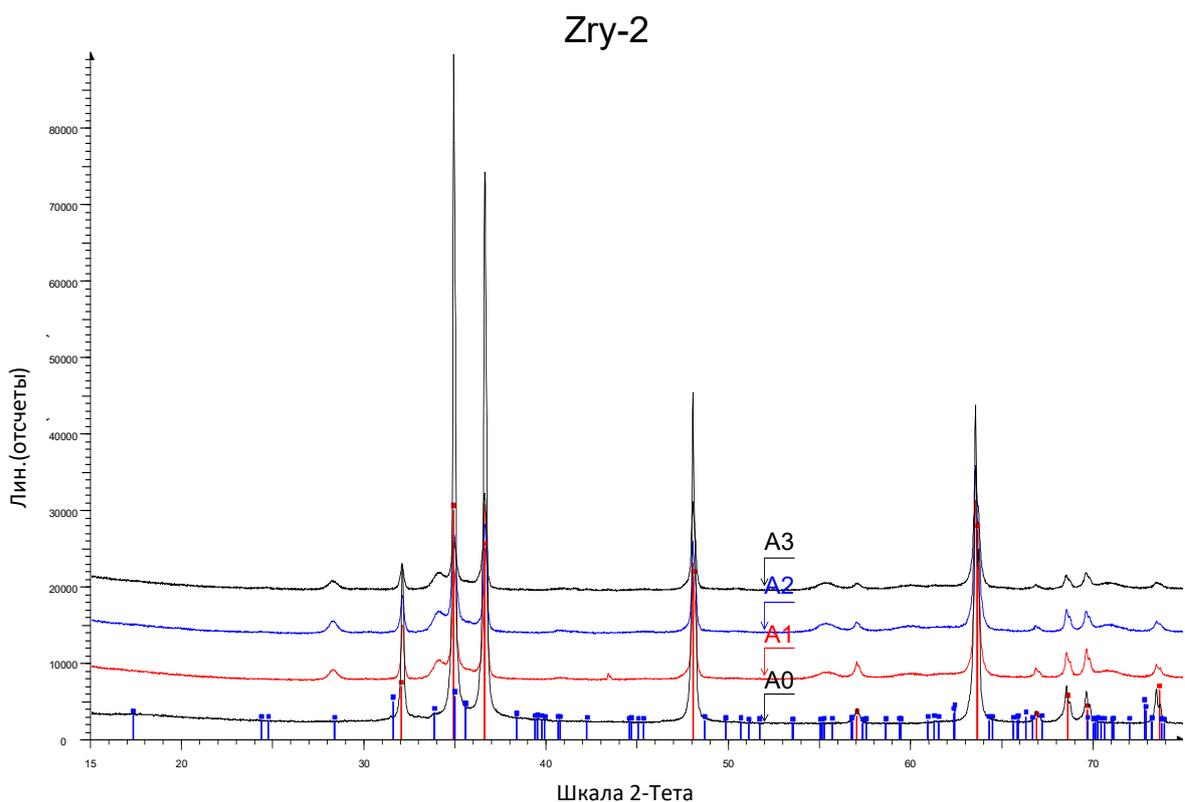


РИС. 50. РД анализ образца из Zry-2 в ходе испытания на длительную коррозию (красные маркеры – гексагональный Zr; синие маркеры – ZrO_2 ; A0 – 0 суток, A1 – 21 сутки, A2 – 42 дня, A3 – 63 дня).

Морфология образца до и после испытаний показана на рис. 51.

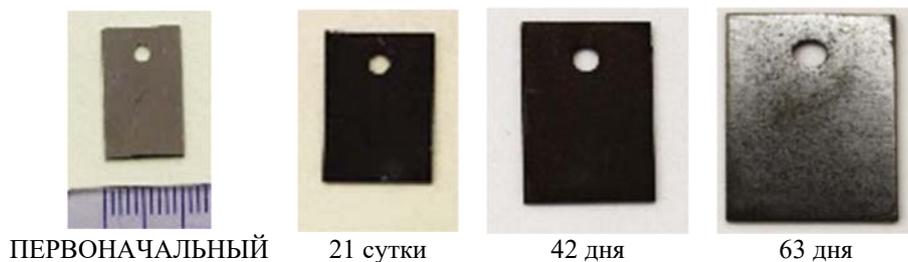


РИС. 51. Общий вид образца из Zry-4 во время испытания.

Было отмечено, что в результате окисления поверхности возросли шероховатость и неровности поверхности и, как показано на рис. 52, обнаруживаются видимые морфологические объекты, такие как зерна и агломераты.

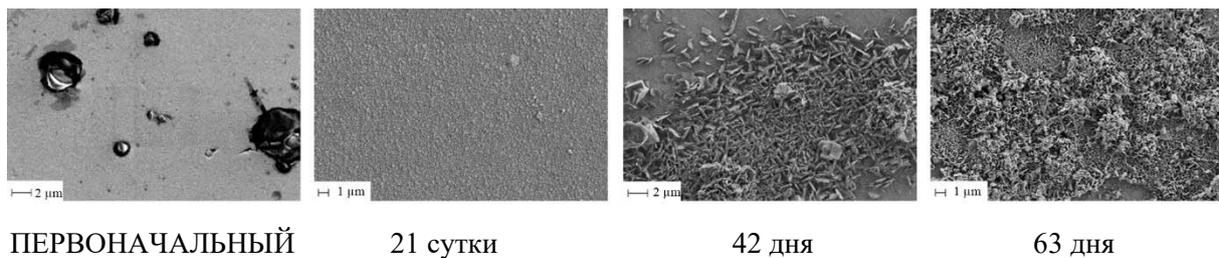


РИС. 52. СЭМ-микрофотографии образца из Zry-4 во время испытания.

Слои оксида образовались через 21, 42 и 63 дня. Элементный анализ показал, что оксидные слои содержали только цирконий и кислород, как показано на рис. 53.

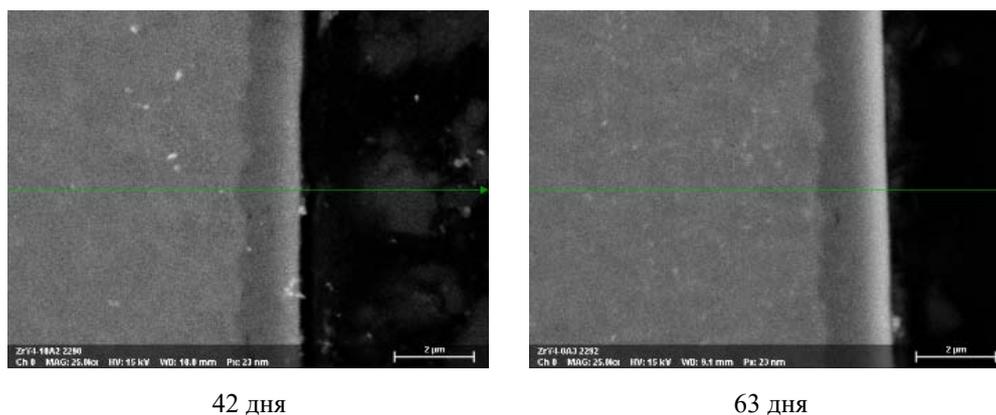


РИС. 53. Срез Zry-4 через 42 и 63 суток (СЭМ).

Данные по привесу массы представлены в таблице 19 и показывают аналогичные результаты через 21, 42 и 63 дня. Формирование окисленного слоя, по-видимому, было непрерывным.

ТАБЛИЦА 19. ПРИВЕС МАССЫ ОБРАЗЦА ИЗ ZRY-4

	21 сутки	42 дня	63 дня
Изменение массы поверхностного слоя [%]	3,1	3,525	3,45

3.7.2. Zry-2 с PVD Cr покрытием

Морфология образца с Cr покрытием до и после испытания показана на рис. 54. Через 21 сутки цвет поверхности образца изменился с серого на золотистый. Через 42 и 63 дня цвет поверхности стал темнее.

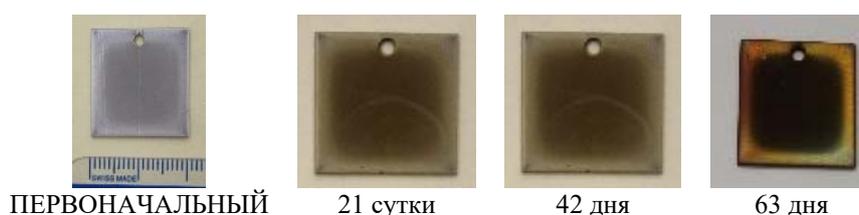


РИС. 54. Общий вид образца из Zry-2 с Cr покрытием во время испытания.

После испытания зернистая морфология поверхности сохранилась. Плотность зерен осталась прежней.

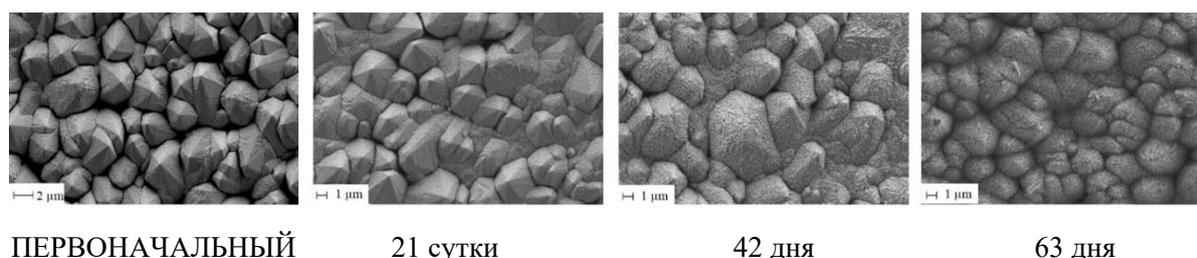


РИС. 55. СЭМ-микрофотографии образца из Zry-2 с Cr покрытием во время испытания, X 10000.

Измеренная толщина покрытия составила 26 мкм. На рис. 56 виден тонкий оксидный слой после 21, 42 и 63 дней.

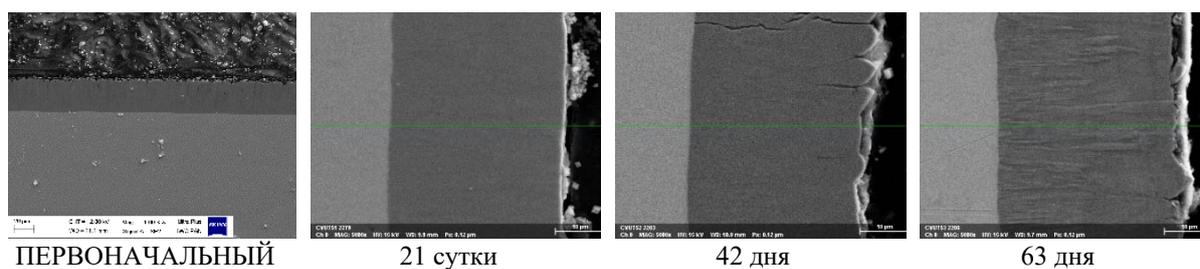


РИС. 56. Срез образца из Zry-2 с Cr покрытием при получении и после воздействия в течение 21, 42 и 63 суток (СЭМ).

В таблице 20 показан привес массы после различных периодов воздействия.

ТАБЛИЦА 20. ПРИВЕС МАССЫ ПОВЕРХНОСТНОГО СЛОЯ ОБРАЗЦА ИЗ ZRY-2 С PVD CR ПОКРЫТИЕМ

	21 сутки	42 дня	63 дня
Изменение массы поверхностного слоя [%]	0,375	0,51	0,94

Наличие чистого Cr было подтверждено методом РД. Красные маркеры показывают пики чистого металлического Cr. Слабые отражения/пики видны при $2\theta = 33,75^\circ$ и $2\theta = 55,096^\circ$. Вероятно, они принадлежат оксиду хрома. Ввиду толщины Cr покрытия (около 26 мкм) фаза подложки из Zry-2 не была видна.

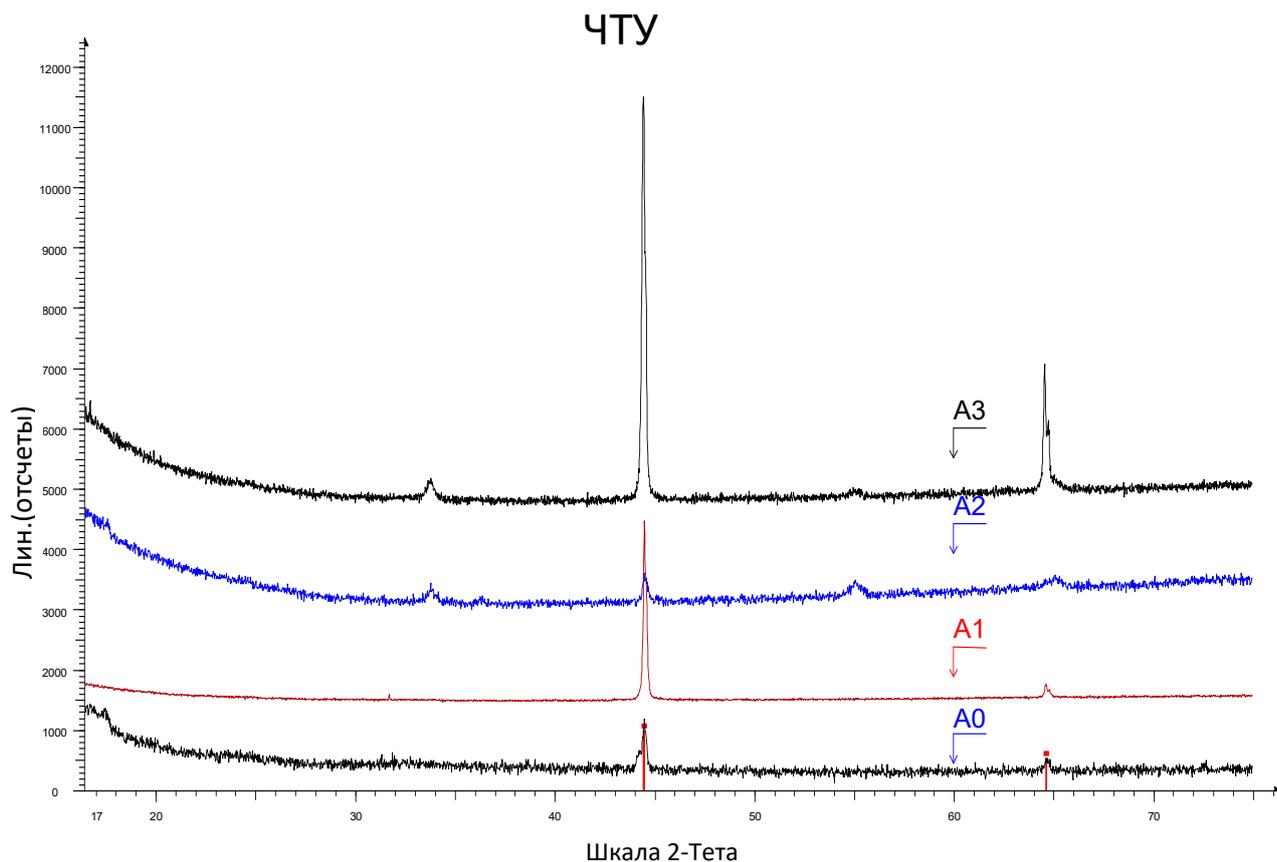


Рис. 57. Данные РД анализа образца из ZrO₂ с Cr покрытием в ходе испытания на длительную коррозию (A0 – при получении, A1 – 21 сутки, A2 – 42 дня, A3 – 63 дня). Основной пик соответствует (110), второй – (200). Рост Cr₂O₃ в A2 и A3 можно увидеть в пике при 33° (2-тета).

3.7.3. ZrO₂ с PVD Cr/Cr₂AlC/Cr покрытием (MAX-фаза)

Морфология образцов с PVD покрытием MAX-фаза показана на рис. 58. Было обнаружено растрескивание и отслаивание покрытия. У некоторых материалов покрытия отслаивание проявилось во время обращения с образцами при определении характеристик после испытаний. После окисления образовались тёмные оксиды.

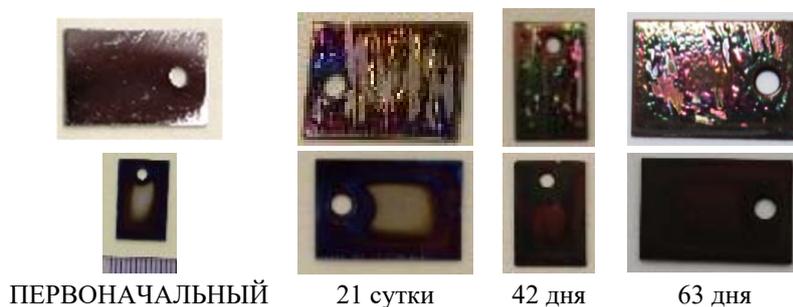


Рис. 58. Общий вид образца из ZrO₂ с покрытием MAX-фаза во время испытания.

Покрытие выглядит гладким, хотя были видны некоторые трещины. После воздействия были видны новые морфологические объекты, такие как, например, зерна, агломераты. Образцы, подвергшиеся воздействию в течение 21 суток, были покрыты частично, а образцы, подвергшихся воздействию в течение 42 и 63 суток, были покрыты полностью.

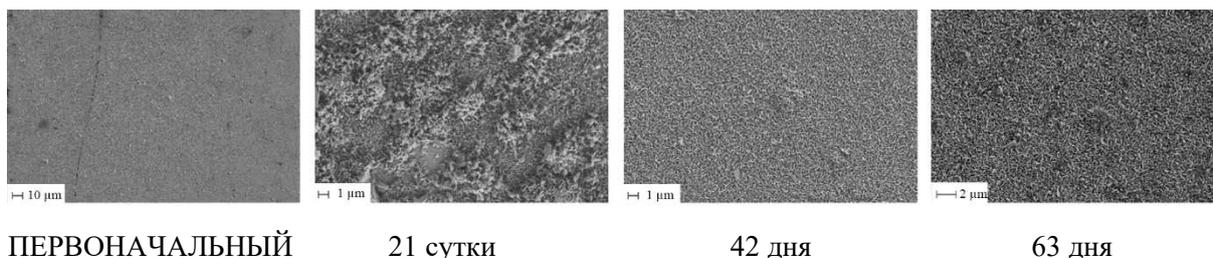


Рис. 59. СЭМ-микрофотографии образца из Zry-4 с покрытием МАХ-фаза во время испытания, X 1000 и X 10000.

СЭМ-ЭДС анализ среза через 63 дня показывает дополнительный слой, образовавшийся между материалом и покрытием и состоящий в основном из Cr (отсутствовавший ранее). На обоих краях этого слоя наблюдается более высокая концентрация кислорода. Слой покрытия содержит небольшое количество Al.

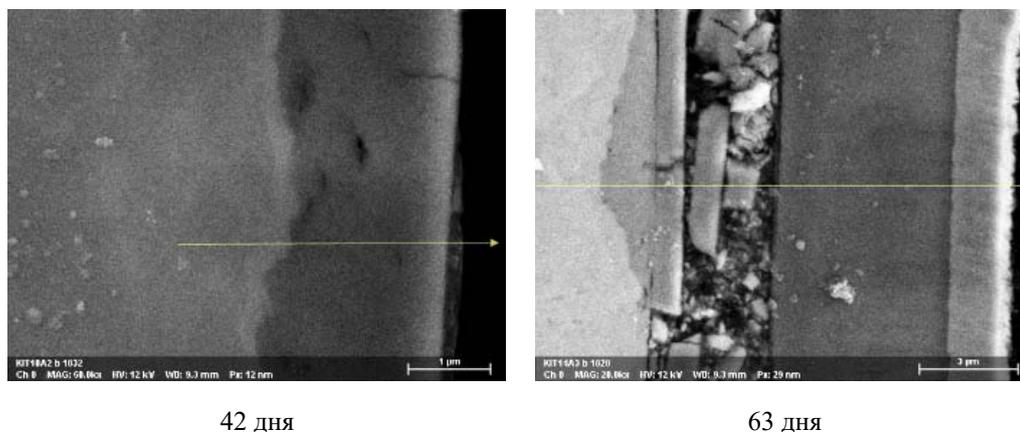


Рис. 60. Срез образца из Zry-4 с покрытием МАХ-фаза через 42 и 63 дня (СЭМ).

Данные по привесу массы приведены в таблице 21. Изменение массы происходит в результате трех тесно связанных процессов: окисления покрытия и подложки, отслаивания покрытия и растворения элементов в рабочих условиях PWR.

ТАБЛИЦА 21. ПРИВЕС МАССЫ ПОВЕРХНОСТНОГО СЛОЯ ОБРАЗЦА ИЗ ZRY-4 С PVD ПОКРЫТИЕМ МАХ-ФАЗА

	21 сутки	42 дня	63 дня
Изменение массы [%]	-3,555	-0,783	1,05

РД анализ подтвердил наличие Cr, а также оксида хрома Cr₂O₃ – синие и зеленые маркеры. Красные маркеры располагаются на линиях, отмечающих фазу Cr₂AlC (база данных).

ТИК

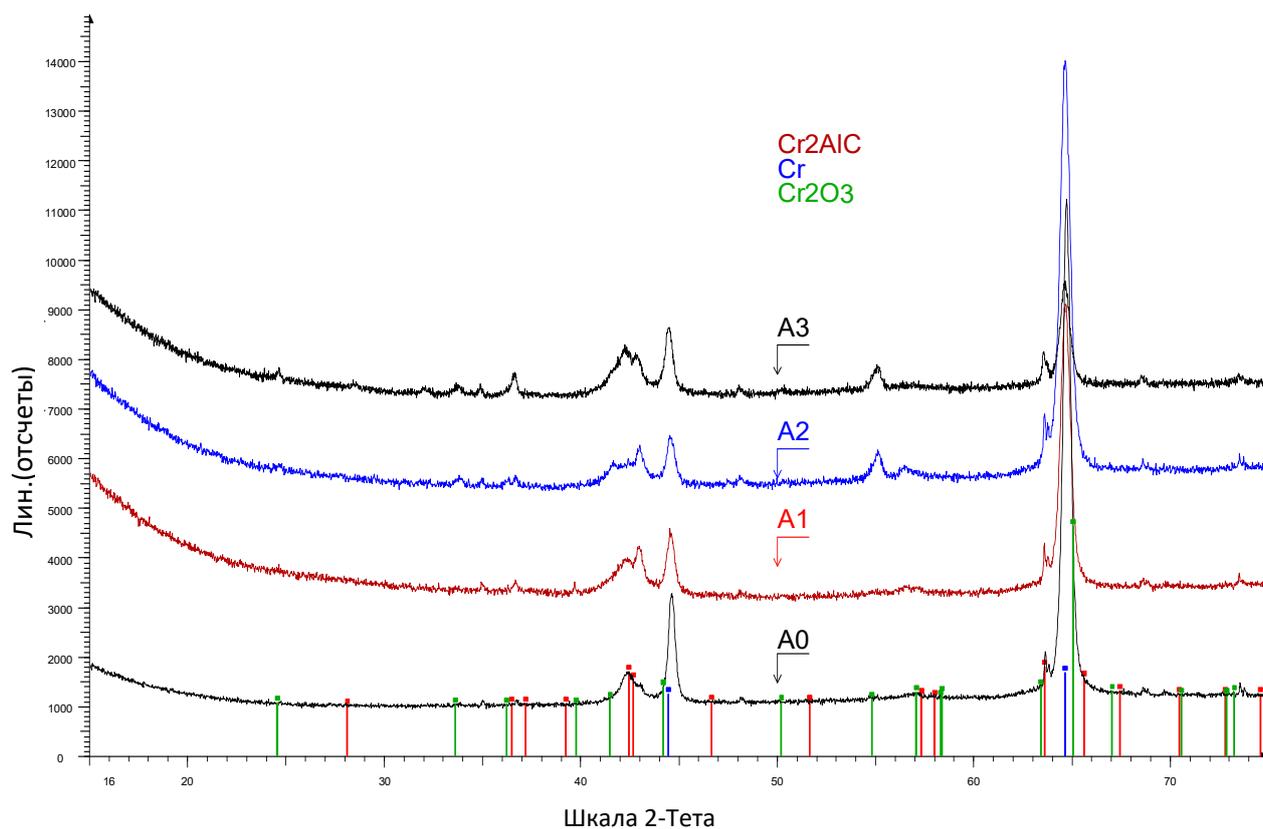


Рис. 61. Данные РД анализа образца из ZrO₂ с покрытием МАХ-фаза в ходе испытания на длительную коррозию (A0 — при получении, A1 — 21 сутки, A2 — 42 дня, A3 — 63 дня).

3.7.4. ZrO₂ с PVD ZrSi-Cr покрытием

Внешний вид образцов с ZrSi-Cr покрытием во время испытания на коррозию показан на рис. 62.

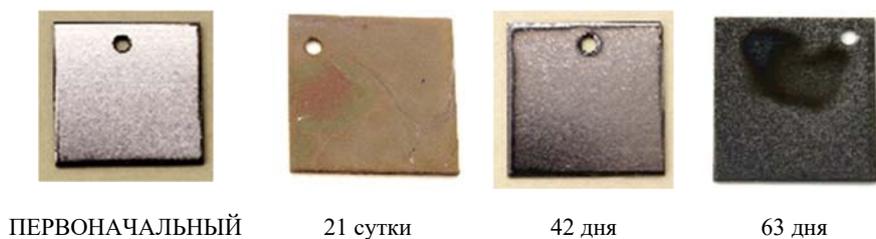


Рис. 62. Морфология образцов из ZrO₂ с ZrSi-Cr покрытием во время испытания.

Поверхность образцов стала более грубой с нерегулярными структурами и видимыми морфологическими объектами, такими как зерна и агломераты, образовавшимися после воздействия.

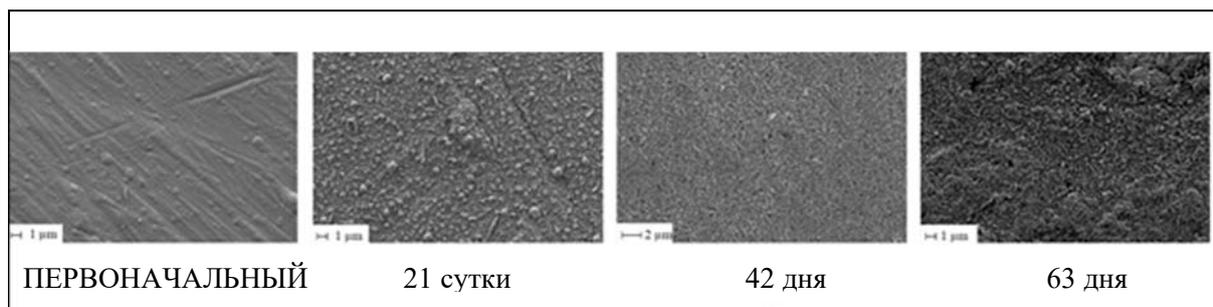


РИС. 63. СЭМ-микротографии образца Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием во время испытания.

После воздействия образцы были полностью покрыты окисленными продуктами различной формы, такими как волокна, иглы и пластины.

После 21 суток испытания на покрытии образовался оксидный слой. Срез образца после 42 суток воздействия свидетельствует о наличии оксидов, включая оксид Cr и оксидный комплекс. В срезе образца после 63 суток испытаний наблюдается другой профиль состава оксидов. Толщина покрытия меньше, но концентрация элементов находится на том же уровне, что и раньше. В срезе образцов после 21 и 42 суток воздействия наблюдается наличие оксидных слоев, а также слоев покрытия.

Показано, что покрытие окислено и защищает подложку от окисления.

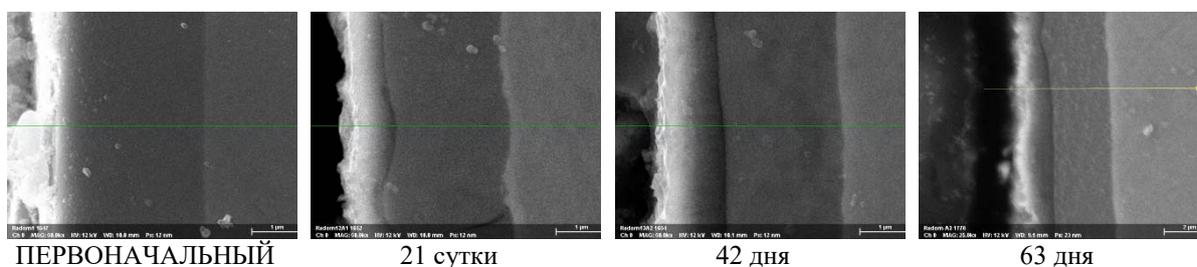


РИС. 64. Срез подготовленного образца из Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием через 21, 42 и 63 дня (СЭМ).

Данные по привесу массы приведены в таблице 22. Было установлено, что по истечении 21 суток масса вообще не изменилась, через 42 дня привес массы был небольшим, а через 63 дня привес массы был значительным. Результаты исследования позволяют предполагать, что покрытие может утратить функцию защиты подложки после короткого воздействия.

ТАБЛИЦА 22. ПРИВЕС МАССЫ ПОВЕРХНОСТНОГО СЛОЯ ОБРАЗЦА ИЗ ZRY-2 С PVD ZRSi-Cr ПОКРЫТИЕМ

	21 сутки	42 дня	63 дня
Изменение массы поверхностного слоя [%]	0,0	4,733	72,625

На рис. 65 показаны результаты РД анализа для образца при получении и для окисленных образцов. Красные маркеры отражают гексагональную кристаллическую структуру циркония. Эти пики относятся к спектру базового материала (Zry-2). Была обнаружена циркониевая структура, так как толщина покрытия мала и составляет всего 2,5 мкм. Моноклинная фаза оксида циркония ZrO_2 также видна и показана синими маркерами. Для материала покрытия пик не был определен. Выпуклость в положении около $2\theta = 40$ градусов на спектре A0 означает, что покрытие аморфно. В случае окисленных образцов интенсивность для покрытия уменьшается, а интенсивность оксида циркония увеличивается, что говорит о том, что во время воздействия покрытие может расходоваться.

Набор спектров РД в первоначальном состоянии и после автоклавных испытаний Zry-2 с $Zr_{40}Si_{24}Cr_{36}$ покрытием подтвердил, что во время автоклавных испытаний происходил процесс окисления. Пики, характерные для моноклинной фазы ZrO_2 , наблюдались после испытания A1 в точке $2\theta = 51^\circ$ и после

испытания A2 в точках $2\theta = 34, 42, 51$ (сильнее, чем после A1), 56 и 66° . Расширение пиков было связано с дисперсионными оксидными зёрнами.

ИЯХТ

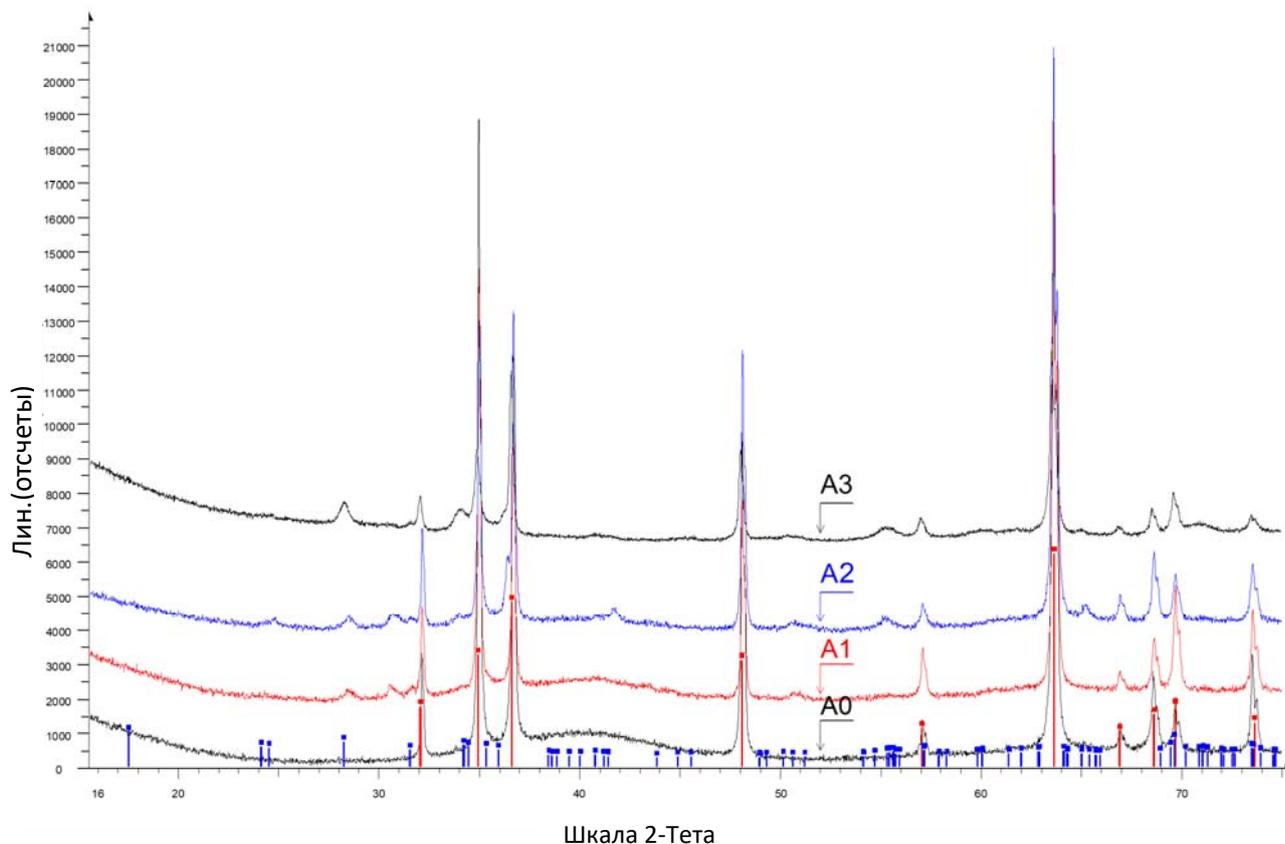


Рис. 65. Данные РД анализа образца из Zr-2 с ZrSi-Cr покрытием в ходе испытания на длительную коррозию (A1 – 21 сутки, красный цвет; A2 – 42 дня, синий цвет; A3 – 63 дня).

3.7.5. Нержавеющая сталь марки AISI 348

Фотографии образца из AISI 348 показывают, что после испытаний на окисление цвет поверхности изменился с серого на золотисто-коричневый. Тот же золотистый цвет наблюдался и в случае окисленных образцов с Cr покрытием.

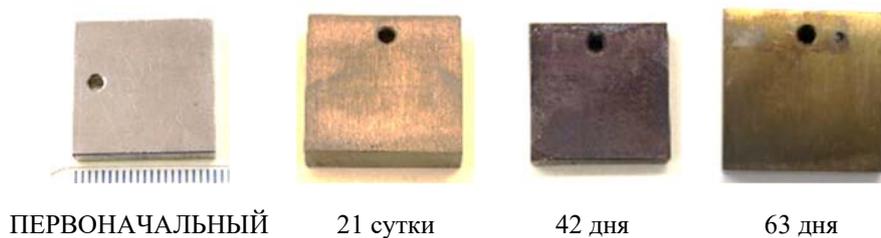


Рис. 66. Общий вид образца из нержавеющей стали марки AISI 348 во время испытания.

Морфология поверхности образцов до и после автоклавных испытаний показана на рис. 67. Как показано на рисунках, поверхность стала более неровной вследствие окисления. Были также обнаружены трещины на поверхности. Наблюдались различные формы оксидных зёрен, в том числе игольчатые зёрна, пластинчатые зёрна и сферические зёрна.

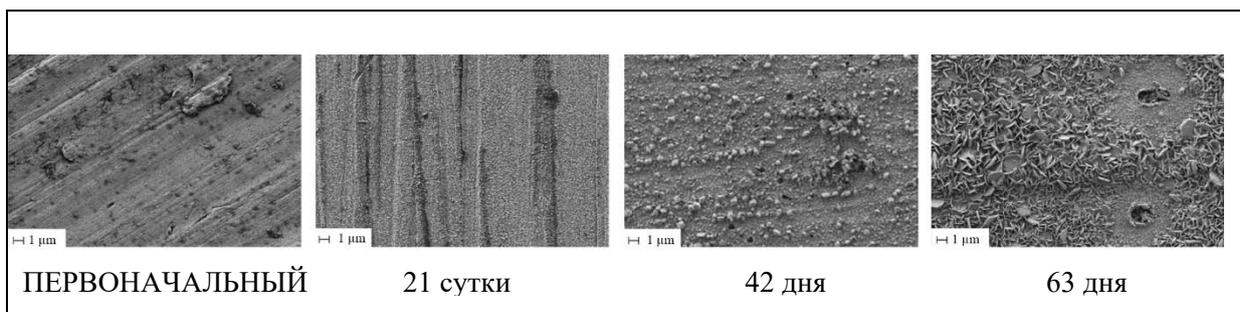


Рис. 67. СЭМ-микрофотографии образца из AISI 348 во время испытания, X10000.

Различий в элементном составе образцов до и после автоклавного испытания не наблюдалось. Оксидный слой, образовавшийся на поверхностях, содержит все элементы, присутствующие в подложке. Толщина образовавшегося оксидного слоя составила около 1,0 мкм.

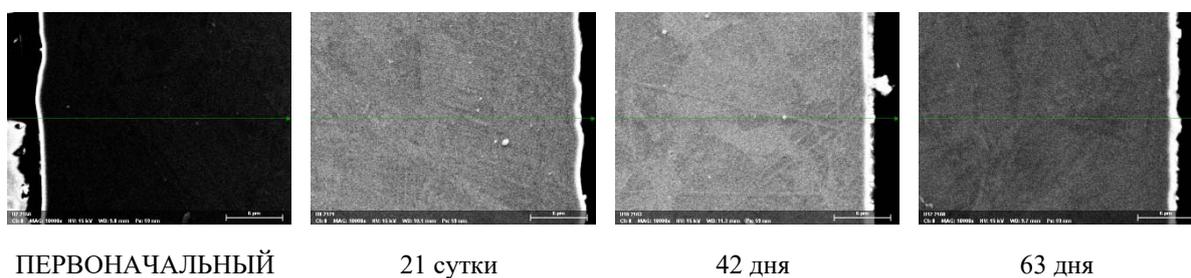


Рис. 68. Срез образца из AISI 348 при получении и через 21, 42 и 63 дня (СЭМ).

Данные по привесу массы приведены в таблице 23.

ТАБЛИЦА 23. ПРИВЕС МАССЫ ПОВЕРХНОСТНОГО СЛОЯ ОБРАЗЦА ИЗ НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ МАРКИ AISI 348

	21 сутки	42 дня	63 дня
Привес массы поверхностного слоя [%]	0,204	1,127	0,736

Наличие регулярной фазы в Fm-3M симметрии с параметром решетки $a = 3,5843 \text{ \AA}$ было подтверждено красными маркерами. Наличие оксида железа Fe_2O_3 было подтверждено, начиная со спектра A2, синими маркерами. Пик при $2\theta = 44,514^\circ$ может принадлежать bcc фазе (Im-3m) с параметром решетки $a = 2,87787 \text{ \AA}$.

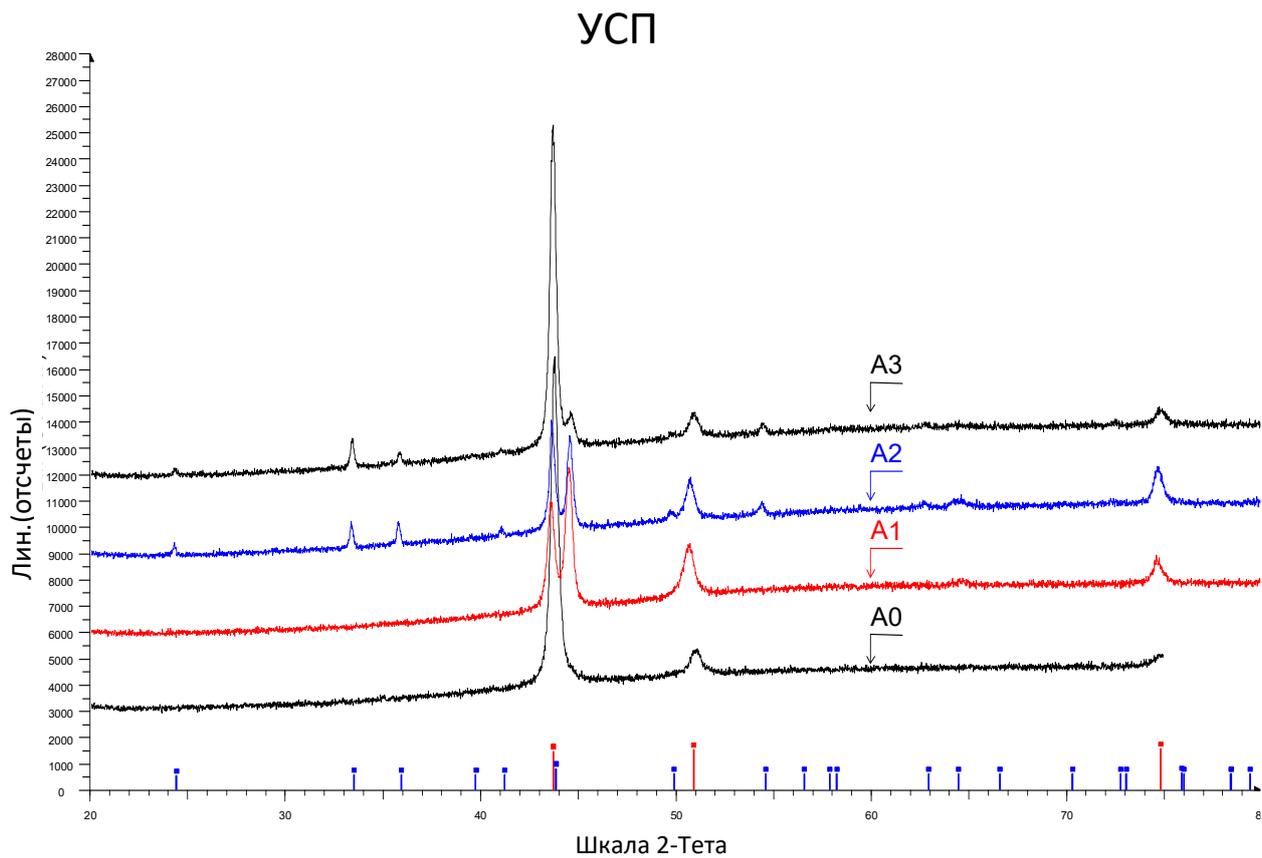


Рис. 69. Данные РД анализа образца из AISI 348 с Cr покрытием в ходе испытания на длительную коррозию (A1 – 21 сутки, A2 – 42 дня, A3 – 63 дня).

3.8. ОБСУЖДЕНИЕ

Несмотря на то, что, как правило, считается, что материалы ATF повышают устойчивость к авариям, они должны работать, по крайней мере, так же хорошо, как и эталонная топливная система, а именно, циркониевая оболочка и таблетки из UO_2 . В результате были проведены вне реакторные испытания на длительную коррозию с целью определения окислительного поведения материалов-кандидатов для использования в оболочке ATF при нормальных условиях эксплуатации, по сравнению с эталонными материалами на основе Zr.

Как обсуждено ранее, были исследованы шесть потенциальных материалов оболочки:

- два эталонных сплава – Zry-2 и Zry-4;
- Zry-2 с PVD Cr покрытием;
- Zry-2 с PVD Cr/Cr₂AlC/Cr покрытием;
- Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием;
- нержавеющая сталь марки AISI 348.

Условия автоклавных испытаний были описаны выше в настоящем докладе. На рис. 70 приведена сводная информация об изменениях массы, измеренных всеми участниками.

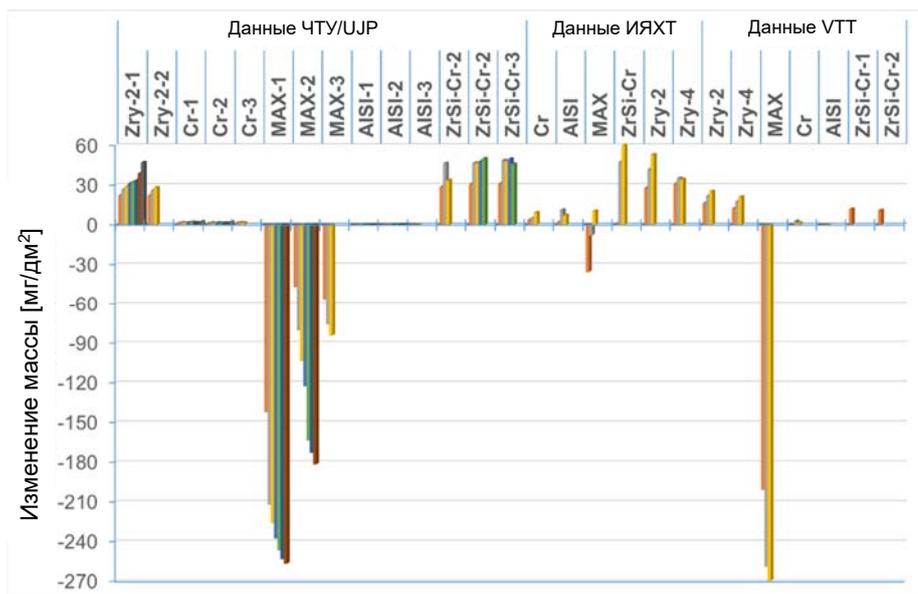


Рис. 70. Данные по изменению массы материалов-кандидатов на использование в оболочке АТФ, которые были испытаны в трех лабораториях: ЧТУ, ИЯХТ и ВТТ.

Результаты определения характеристик образцов из AISI 348 указывают на то, что на поверхности образуется сплошной оксидный слой, но его адгезия слаба. Толщина оксида составляла после 63 суток около 1 мкм. Образцы из Zry-4 с покрытием из PVD MAX-фазы не обеспечивают достаточной защиты для подложки. На слоях покрытия и между покрытием и поверхностью подложки были обнаружены сквозные трещины. Растрескивание может быть вызвано различающимися коэффициентами теплового расширения продуктов окисления. Наблюдаемая толщина слоя покрытия/оксида составляла от 0,5 мкм до 5 мкм после 21-суточного воздействия, от 3 мкм до 10 мкм после 42-суточного воздействия и от 2 мкм до 40 мкм после 63-суточного воздействия. Исходная толщина покрытия составляла около 6,5 мкм. Наблюдаемые толщины слоя покрытия/оксидного слоя являются довольно неточными оценками, поскольку большая часть покрытия была утрачена, скорее всего, во время подготовки образца после испытаний. Наиболее значительные потери покрытия наблюдались после 63-суточного воздействия. Для эталонного образца (без покрытия) толщина слоя оксида после 63 суток воздействия находилась в диапазоне от 1 мкм до 10 мкм. Слой был непрерывным, но слегка пористым, и в оксидном слое было обнаружено несколько сквозных трещин.

Образцы из Zry-2 с PVD Cr покрытием, предоставленные ЧТУ, имели достаточно однородный слой покрытия толщиной от 20 до 30 мкм. Покрытие было однородным, но были обнаружены трещины в покрытии и между покрытием и подложкой. Время воздействия не оказало заметного влияния на содержание Cr и O и целостность покрытия. На эталонном образце Zry-4, подвергшемся воздействию до 63 суток, образовался непрерывный оксидный слой толщиной от 1 мкм до 10 мкм с некоторой пористостью и несколькими трещинами в оксидном слое после наиболее длительного воздействия.

На поверхности образцов из Zry-2 с PVD ZrSiCr покрытием, предоставленных ИЯХТ, после испытания в автоклаве образовался непрерывный, но хрупкий оксидный слой. Также наблюдались сквозные трещины в оксиде и трещины между оксидным слоем и подложкой. Было обнаружено, что после 16,5 суток воздействия имело место поглощение подложкой кислорода, что говорит о том, что после короткого периода воздействия покрытие потеряло защитные свойства.

Подводя итог, PVD Cr покрытием показало хорошую коррозионную стойкость в условиях ВХР как ВВЭР, так и РWR с низкими значениями привеса массы, хотя все еще необходимо определить наводороживание. Нержавеющая сталь марки AISI 348 также показала хорошую коррозионную стойкость с пренебрежимо малым привесом массы. На внешней поверхности образовался чрезвычайно тонкий оксидный слой с высоким содержанием Fe. Покрытие из PVD Cr/Cr₂AlC/Cr и покрытие из PVD ZrSi-Cr не продемонстрировали достаточной коррозионной стойкости, и возможно, необходима их дальнейшая оптимизация. Вместе с тем наводороживание образцов с PVD ZrSi-Cr покрытием оказалось высоким.

Zr сплавы с Cr покрытием имеют весьма низкий привес массы, но наводороживание такое же, как у материалов без покрытия, или выше. Образцы из нержавеющей стали марки AISI 348 имеют низкие уровни как привеса массы, так и наводороживания. Графики изменения массы двух перспективных кандидатов на использование в ATF по сравнению с эталонными образцами циркония без покрытия показаны на рис. 71.

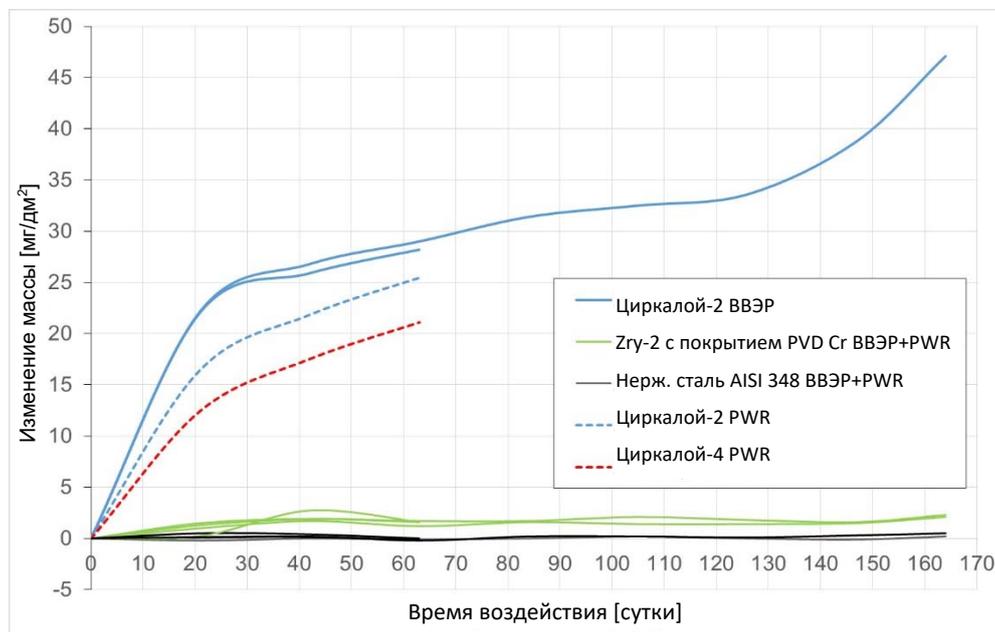


Рис. 71. Изменения массы образцов с PVD Cr покрытием и образцов оболочки из нержавеющей стали AISI по сравнению с эталонными образцами из циркония без покрытия в условиях ВХР PWR и ВВЭР.

4. ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ОКИСЛЕНИЕ

Четыре участника (ЧТУ, VTT, ТИК, МТА ЕК) провели испытания на высокотемпературное (ВТ) окисление. Условия ВТ испытаний изложены ниже:

- поток пара 1100°C, 60 минут;
- поток пара 1200°C, 30 минут;
- поток пара 1300°C, 5 минут.

Эти условия были определены на основе стандартных критериев безопасности топлива при проектной аварии, таких как 17% предел значения ECR (ЭПЧО) (equivalent-cladding reacted — эквивалентной прореагировавшей части оболочки) и охрупчивание оболочки, рассчитанное с помощью корреляции Каткарта-Павела [79]. Кроме того, при определении продолжительности испытания использовался предыдущий опыт испытания ATF материалов оболочки [80].

Некоторые участники решили провести большее число испытаний в случае наличия больших количеств образцов. Сводные данные по испытанным образцам, включая матрицу испытаний, приведены в таблице 24.

ТАБЛИЦА 24. ИСПЫТАНИЯ НА ОКИСЛЕНИЕ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА, ПРОВЕДЕННЫЕ ОТДЕЛЬНЫМИ УЧАСТНИКАМИ

ЧТУ — Чешская Республика	
Материал оболочки	ВТ окисление в атмосфере водяного пара — 1100°, 60 мин.; 1200°, 30 мин.; 1300°C, 5 мин.
AISI 348	X
Zry-2 с Cr покрытием	X
Zry-4 с покрытием	X
МАХ-фаза	
Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием	—
Э110 этал.	X
Э110 с Cr покрытием	X
VTT – Финляндия	
Материал оболочки	ВТ окисление в атмосфере водяного пара — 1100°, 60 мин.; 1200°, 30 мин.; 1300°C, 5 мин.
AISI 348	X
Zry-4 этал.	X
Zry-2 с Cr покрытием	X
Zry-4 с покрытием	X
МАХ-фаза	
Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием	—
ТИК — Германия	
Материал оболочки	ВТ окисление в атмосфере водяного пара — 1100°, 60 мин.; 1200°, 30 мин.; 1300°C, 5 мин.
AISI 348	X
Zry-4 этал.	X
Zry-2 с Cr покрытием	X
Zry-4 с покрытием	X
МАХ-фаза	

Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием	X
МТА ЕК — Венгрия	
Материал оболочки	VT окисление в атмосфере водяного пара — 1100°, 60 мин.; 1100°, 180 мин.; 1200°, 30 мин.; 1200°, 45 мин.; 1200°С, 60 мин.
Э110 с Сг покрытием	X
Э110 этал.	X

В разных лабораториях точные параметры испытаний могут различаться, например, скорость нагрева, скорость потока пара, параметры охлаждения, измерения температуры, держатели образцов и т.д. Кроме того, в различных лабораториях и на различных установках могут измеряться различные параметры, такие как образование водорода или изменение массы в реальном времени. Характеристики образцов определялись до и после испытаний. К методам определения характеристик относятся визуальные осмотры, РД анализ, СЭМ, определение микротвердости, металлография, испытания на сжатие кольца, измерения образования водорода, изменений массы или поглощения водорода. Используемые методы испытаний и установки для испытаний подробно описаны в настоящем докладе или в отдельных докладах (см. приложение).

4.1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ПРОЦЕДУРЫ И УСТАНОВКИ

4.1.1. ЧТУ/UJP

Была использована резистивная печь («CLASSIC»), которая позволяет проводить испытания при температуре до 1450°С. Один образец помещался в предварительно разогретую печь при требуемой температуре в аргонопаровой среде. После воздействия образец подвергался охлаждению в ледяной воде. Рядом с поверхностью образца была установлена Pt термопара. Блок-схема использованной системы приведена на рис. 72.

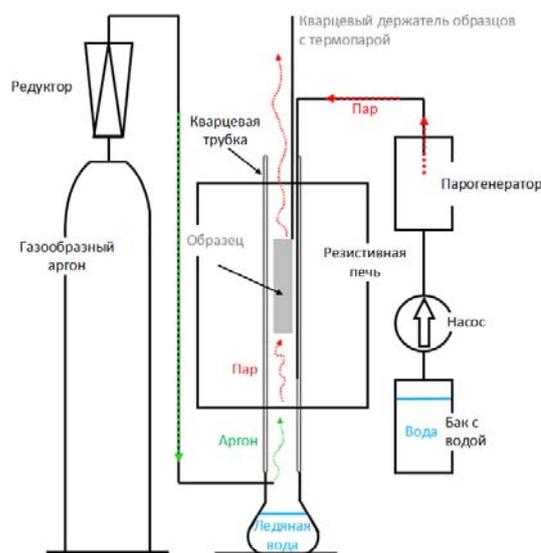


РИС. 72. Блок-схема экспериментальной установки для высокотемпературного окисления в ЧТУ/UJP (воспроизведено с разрешения компании «Эльсевир» [182]).

Графики изменения измеренной температуры образцов во время фазы нагрева до 1200°C показаны на рис. 73 (слева). Можно увидеть, что скорости нагрева наиболее высоки для образцов без покрытия и образцов от ТИК. Это вызвано экзотермической реакцией материала с паром, что предполагает также более высокое образование этими материалами водорода в начале окисления. Скорости нагрева образцов из AISI 348 – самые низкие, а целевая температура была достигнута с небольшой задержкой, и это связано с более высоким весом образцов из AISI и их более высокой теплоемкостью. Оцененные скорости нагрева показаны на рис. 73 (справа).

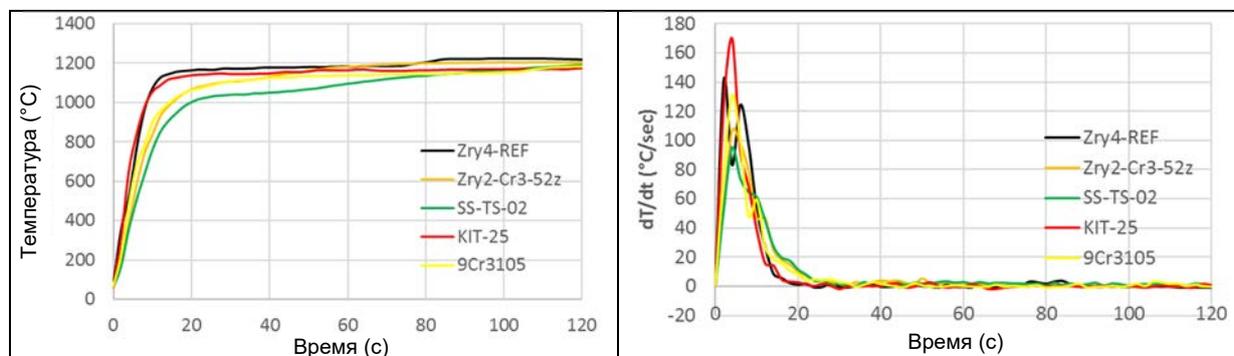


Рис. 73. Измеренные температуры (слева) и скорости нагрева (справа) при испытаниях на окисление в атмосфере водяного пара при 1200 °С.

Перед испытаниями все испытываемые образцы были обезжирены в ацетоне, этаноле и дистиллированной воде. Были измерены размеры и вес каждого образца. После воздействия образцы были измерены, взвешены и разрезаны на несколько частей. Пластинчатые образцы были подвергнуты анализу содержания водорода, металлографии и анализу микротвердости. В отношении разрезанных частей трубчатых образцов проводились испытания на сжатие кольца, измерения содержания водорода и кислорода, а также металлографический анализ и анализ микротвердости среза. Металлографические срезы были подготовлены с использованием стандартной процедуры полировки с последующей металлографической оценкой. Толщина оксидного слоя, покрытий и слоя α -Zr(O) измерялась в нескольких направлениях как на внутренней, так и на внешней кромках оболочки. Для металлографического анализа использовались оптический микроскоп «NIKON Elipse MA200» и анализатор изображений «LUCIA G». Для измерения микротвердости в нескольких местах стенки трубки были произведены металлографические срезы. Были выполнены две серии по 10 измерений в середине стенки. После испытаний на одностороннее окисление от образцов были отрезаны два кольца длиной 7 мм и на установке INSTRON 1185 были проведены при 135°C испытания на сжатие кольца (ИСК). Другие части образцов предназначались для измерений общего содержания водорода с помощью анализатора «G8 GALILEO» (компании «Брукер») по методу плавки в инертном газе. На токарном станке было подготовлено несколько колец без наружных окисленных слоев и покрытия. Используя эту методику, можно было анализировать содержание кислорода во внутренней и внешней частях стенки. Объемное содержание кислорода измерялось с помощью анализатора «G8 GALILEO».

Высокотемпературные испытания на окисление в атмосфере водяного пара и образцы можно разделить на три подгруппы:

- трубчатые образцы — одностороннее окисление с торцевыми заглушками без покрытия (матрица испытаний приведена в таблице 25);
- пластины (матрица испытаний приведена в таблице 26);
- трубчатые образцы — одностороннее окисление с подложкой из Zr1%Nb — с торцевыми заглушками с покрытием (матрица испытаний приведена в таблице 27).

Кроме того, с целью изучения эффекта окисления в воздухе было проведено испытание на окисление в воздухе одного из образцов.

ТАБЛИЦА 25. МАТРИЦА ИСПЫТАНИЙ НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ОКИСЛЕНИЕ ТРУБЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА

Идентификатор образца	Материал	Температура [°C]	Время окисления [мин]
Zry2-REF-51	Эталонный, из Zry-2	1200	30
Zry2-Cr3-51	Zry-2 + Cr покрытие	1300	5
Zry2-Cr3-52	Zry-2 + Cr покрытие	1200	30
Zry2-Cr3-53	Zry-2 + Cr покрытие	1100	60
SS-TS-01	AISI 348	1300	5
SS-TS-02	AISI 348	1200	30
SS-TS-03	AISI 348	1100	60
SS-TS-05	AISI 348	1400	2

ТАБЛИЦА 26. МАТРИЦА ИСПЫТАНИЙ НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ОКИСЛЕНИЕ ПЛАСТИНЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА

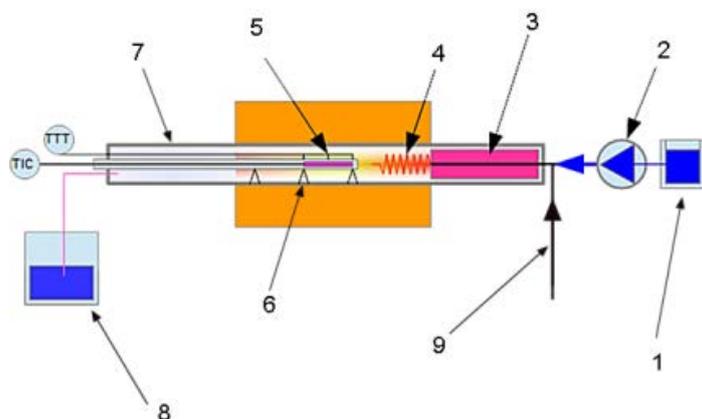
Идентификатор образца	Материал	Температура [°C]	Время окисления [мин]
Zry2-REF	Эталонный, из Zry-2	1200	30
KIT-24	Zry-4 + МАХ-фаза	1300	5
KIT-25	Zry-4 + МАХ-фаза	1200	30
KIT-26	Zry-4 + МАХ-фаза	1100	60
SS-PS-17	AISI 348	1200	30

ТАБЛИЦА 27. МАТРИЦА ИСПЫТАНИЙ НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ОКИСЛЕНИЕ ТРУБЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ ИЗ ZR1%NB С Cr ПОКРЫТИЕМ

Идентификатор образца	Материал	Температура [°C]	Время окисления [мин]
9Cr3101	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	30
9Cr3102	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	45
9Cr3103	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	60
9Cr3104	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	45
9Cr3105	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	30
9Cr3106	Zr1%Nb + Cr покрытие	1300	5
9Cr3107	Zr1%Nb + Cr покрытие	1100	60
9Cr3108	Zr1%Nb + Cr покрытие	1100	180
9Cr3109	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	75
9Cr3110	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	90
9Cr3111	Zr1%Nb + Cr покрытие	1300	9
9Cr3112	Zr1%Nb + Cr покрытие	1300	9
9Cr3113	Zr1%Nb + Cr покрытие	1100	480
9Cr3V01 на откр. воздухе	Zr1%Nb + Cr покрытие	1200	60

4.1.2. VTT

Паровые испытания проводились с использованием паровой печи в потоке пара с температурой 1100–1300 °С, показанной на рис. 74. Печь состоит из трубки из глинозема (рабочей трубки), трубки для образцов и держателя образцов, изготовленных из рекристаллизованного глинозема (РКГ). Печь имеет одну зону, т.е. в середине испытательного участка обеспечивается равномерный нагрев. Желаемую температуру можно поддерживать в зоне длиной 100 мм с помощью нагревательных элементов из карбида кремния. Максимальная температура паровой печи составляет 1600°С. Более подробную информацию о результатах высокотемпературных испытаний, проведенных в VTT в рамках ПКИ АКТОФ, можно найти в отдельном докладе VTT TECDOC, озаглавленном «Performance of candidate ATF cladding materials in simulated high temperature steam and normal LWR conditions» («Характеристики материалов-кандидатов на использование в оболочке ATF при моделировании воздействия высокотемпературного пара и нормальных условий LWR») (см. приложение).



- | | |
|--|------------------------------|
| 1. Водяной бак для возможного охлаждения | 6. Опора из глинозема |
| 2. Насос для ЖХВД | 7. Трубка из глинозема |
| 3. Предварительный нагреватель | 8. Бак для охлаждения |
| 4. Спиральный высокотемпературный нагреватель | 9. Трубопровод подачи аргона |
| 5. Трубка оболочки ATF с внутренним подогревом и контролем температуры | |

РИС. 74. Схематическое изображение печи VTT для проведения испытаний на окисление в атмосфере водяного пара образцов оболочки ATF.

4.1.3. ТИК

Эксперименты по высокотемпературному окислению в атмосфере водяного пара проводились с использованием трубчатой печи с горизонтальным коробом. Схематическое изображение этой печи представлено на рис. 75. Испытания проводились при трех значениях температуры и продолжительности: 60 мин. при 1100°С, 30 мин. при 1200°С и 5 мин. при 1300°С. Образцы помещались на корундовый тигель держателя, расположенный в центре печи, а не на стержень держателя образца, как показано на рис. 75. Нагрев от температуры окружающей среды до заданного значения со скоростью нагрева 10 К/мин и охлаждение до температуры окружающей среды происходили в атмосфере высокочистого Ar с расходом 20 л/ч. Пар впрыскивался в печь путем перехода на режим расхода газа 20 л/ч Ar и 20 г/ч H₂O. Концентрация пара на этапе окисления составляла около 55 об.%. Образцы окислялись в атмосфере водяного пара в течение заданного времени. На рис. 76 показан график изменения температуры во время испытания на окисление.

Газовый состав и расход во время проверки определялись контроллерами расхода и системой регулируемого испарения и смешивания (РИС). Состав отходящего газа анализировался на месте квадрупольным масс-спектрометром (Balzers GAM300). При анализе состава газа основное внимание уделялось эволюции уровня образовавшегося водорода в отходящем газе во время испытаний, который использовался в качестве меры скорости окисления. Атмосфера чистого пара не может быть обеспечена,

так как аргон необходим в качестве газа-носителя и эталонного газа для масс-спектрометрического анализа.

Масса образцов до и после ВТ испытаний измерялась на аналитических весах. Характеристики образцов также определялись методами РД (Seifert PAD II) и СЭМ (Philips XL30S).

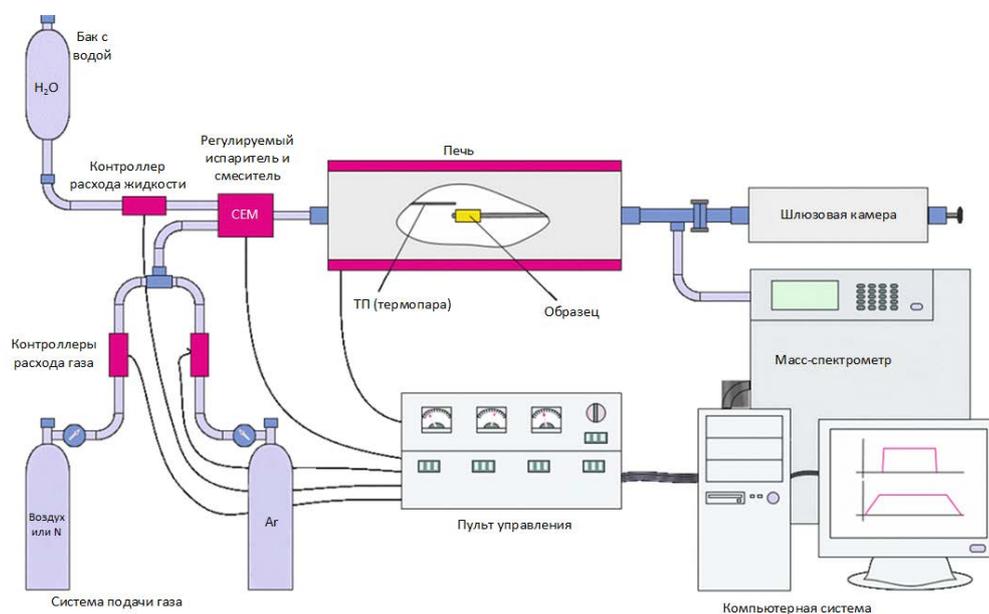


РИС. 75. Схематическое изображение системы с коробовой печью.

Более подробную информацию о результатах высокотемпературных испытаний, проведенных в ТИК в рамках ПКИ АКТОФ, можно найти в докладе ТЕСДОС ТИК «Round Robin High temperature Oxidation Tests at KIT» («Круговые испытания на высокотемпературное окисление в ТИК») (см. приложение).

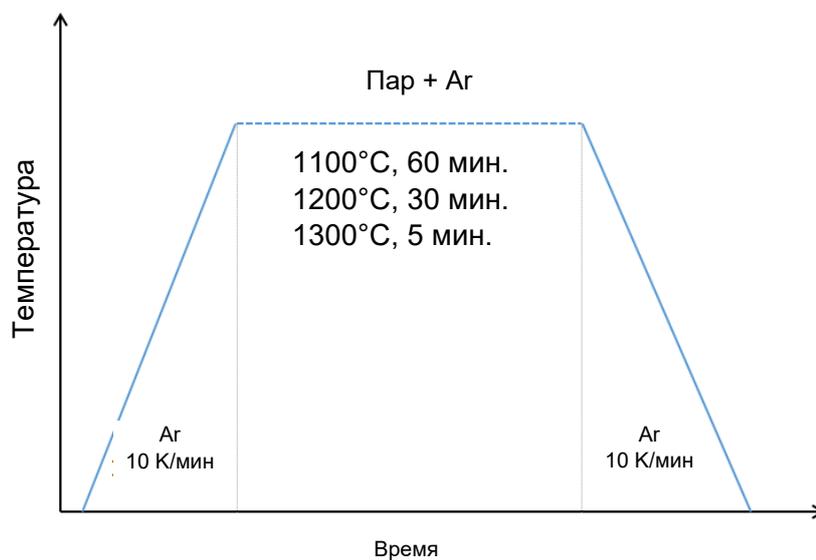


РИС. 76. График изменения температуры во время испытания на окисление при трех различных температурах.

4.1.4. МТА ЕК

В рамках работ по КИ компания МТА ЕК провела ВТ испытания 8 трубчатых образцов оболочки длиной 60 мм из Zr1%Nb на губчатой основе, результаты которых представлены в таблице 24. Были испытаны два типа образцов: образцы из Zr1Nb с PVD Cr покрытием и эталонные образцы из Zr1Nb без покрытия. Все трубчатые образцы были снабжены двумя торцевыми заглушками, так что окисление происходило только с одной стороны стенки.

В представленной серии испытаний были испытаны 8 образцов: 5 образцов с Cr покрытием – на окисление в атмосфере водяного пара, 2 эталонных образца (без покрытия) – на окисление в атмосфере водяного пара и 1 образец с Cr покрытием – на окисление на воздухе. Матрица испытаний приведена в таблице 28.

ТАБЛИЦА 28. МАТРИЦА ИСПЫТАНИЙ НА ОКИСЛЕНИЕ ОБРАЗЦОВ

Образец	Образец	Атмосфера	Температура [°C]	Время окисления [с]
IAEA-01	Zr1Nb с PVD Cr покрытием	воздух	1200	3600
IAEA-02	эталонный Zr1Nb	пар	1100	3600
IAEA-03	Zr1Nb с PVD Cr покрытием	пар	1100	3600
IAEA-04	Zr1Nb с PVD Cr покрытием	пар	1100	10800
IAEA-05	эталонный Zr1Nb	пар	1200	1800
IAEA-06	Zr1Nb с PVD Cr покрытием	пар	1200	1800
IAEA-07	Zr1Nb с PVD Cr покрытием	пар	1200	2700
IAEA-08	Zr1Nb с PVD Cr покрытием	пар	1200	3600

Перед проведением испытаний образцы были обезжирены в ацетоне. Были измерены размеры и масса каждого образца.

Циркониевые образцы окислялись в атмосфере водяного пара, смешанного с 12 об.% аргона или в чистом воздухе в изотермических условиях при температуре 1200°C и 1100°C. Для окисления образцов использовалась высокотемпературная трубчатая печь с кварцевой трубкой. Экспериментальная установка (рис. 77) состояла из парогенератора, трёхзонной горизонтальной печи с системой регулирования температуры и конденсационной системы. Под выходную часть печи был помещен большой (прибл. 6 дм³) заполненный холодной водой сосуд для охлаждения окисленных образцов. Расход пара составлял около 2 мг/см²/с. Расход воздуха составлял около 8 мг/см²/с. После стабилизации температуры и потока пара кварцевая лодочка с образцом вдвигалась в нагретую зону печи. По окончании окисления образец охлаждался. В случае окисления на воздухе парогенератор не использовался и в печь подавался воздух из баллона.

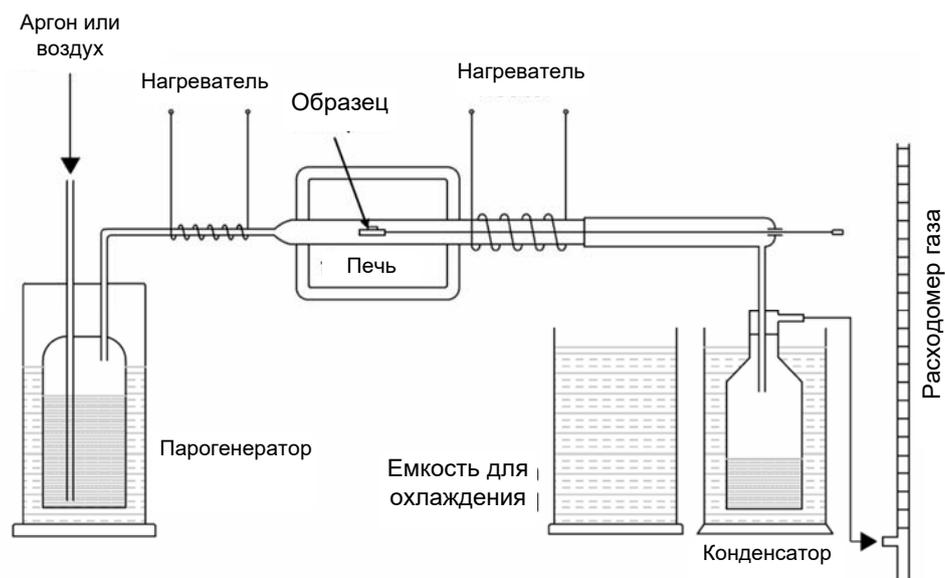


РИС. 77. Схема экспериментальной установки для окисления циркониевых образцов.

Радиальные испытания на сжатие кольца проводились при 135°C на стандартной разрывной испытательной машине типа «INSTRON 1195» (рис. 78). Разрывная испытательная машина была оснащена специальной печью, с тем чтобы поддерживать высокую температуру во время испытания. Каждое измерение начиналось с периода нагрева (10 мин), с тем чтобы установить равномерное распределение температуры в испытательном отсеке. Применяемая скорость траверсы составляла 2 мм/мин. Во время испытаний велась регистрация кривых «нагрузка-перемещение».

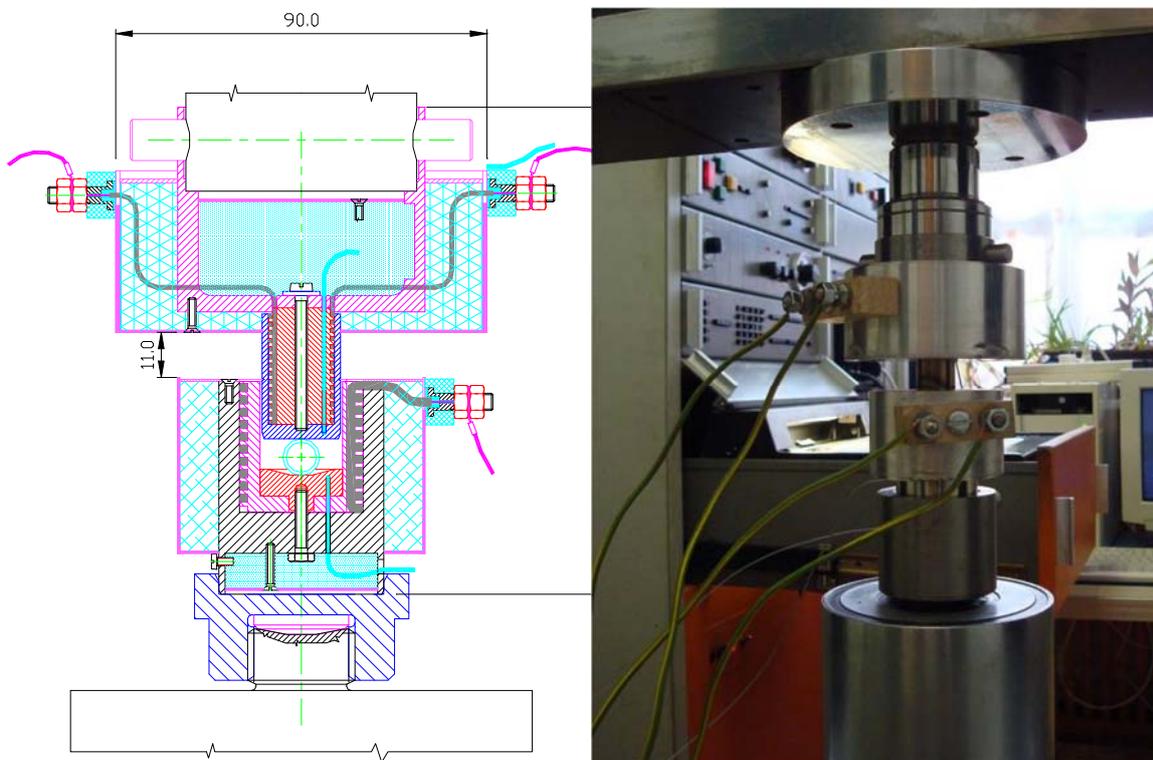


РИС. 78. Чертеж и фотография машины для испытаний на растяжение/сжатие, оборудованной печью.

4.2. РЕЗУЛЬТАТЫ: ЧТУ/UJP

Как описано в предыдущем разделе, образцы были разделены на три группы в зависимости от их геометрической формы и материалов. Изображения образцов после воздействия и микроструктур представлены в таблице 29 для пластин, в таблице 30 для трубчатых образцов и в таблице 31 для трубчатых образцов из Zr1%Nb с Cr покрытием.

Визуальная оценка эталонных образцов без покрытия выявила темно-серый оксидный слой, который отслоился на трубчатых образцах из Zry-2 во время охлаждения. Анализ микроструктуры показал наличие однородного оксидного слоя и слоя α -Zr(O) под ним. В случае пластинчатого образца с двусторонним окислением образец был полностью окислен: под слоем ZrO₂ толщиной 113 мкм находился слой α -Zr(O). Не было найдено остатков ранее существовавшей β -Zr фазы. На окисленном с одной стороны трубчатом образце с торцевыми заглушками были обнаружены однородный слой ZrO₂ толщиной 150 мкм и слой α -Zr(O) толщиной 162 мкм с некоторыми дополнительными проникновениями в направлении ранее существовавшей β -Zr фазы.

Визуальная оценка показала локальное отслаивание покрытия из MAX-фазы при температурах 1100 и 1200°C. По результатам оценки микроструктуры покрытие сохраняет защитную функцию, если оно сохранилось после испытания. В случае ВТ испытаний при 1300°C покрытие окислилось и утратило защитные свойства. Под покрытием образовались слои ZrO₂ и α -Zr(O).

На поверхности образцов из Zry-2 с Cr покрытием имелся слой оксида темно-зеленого цвета в отличие от черного оксида, образовавшегося на торцевых заглушках образцов из Zr1%Nb без покрытия. Образец Zry-2-Cr3-51, подвергнутый испытанию при температуре 1300°C, имел волнистую поверхность, свидетельствующую об образовании эвтектической смеси Cr-Zr, что было подтверждено анализом среза. Это, по-видимому, вызвано температурным выбросом, превышающим 1330°C, обусловленным перегревом вследствие изотермической реакции окисления торцевых заглушек без покрытия. На поверхности образцов из Zr1%Nb с Cr покрытием (включая торцевые заглушки) наблюдался слой оксида темно-зеленого цвета. Анализ образцов с Cr покрытием показал наличие компактного слоя Cr без трещин с волнистым слоем Cr₂O₃ на поверхности. В отношении образца 9Cr3V01, испытанного на воздухе, было проведено более подробное исследование поверхности. На поверхности видны волнистые образования. Они могут быть следствием увеличения объема при окислении Cr до Cr₂O₃. При этом наблюдается рост и изгиб слоя оксида Cr₂O₃. Также наблюдалось взаимодействие подложки и покрытия. В случае образцов, подвергавшихся воздействию пара, было обнаружено, что происходила диффузия Cr покрытия в подложку, а поглощенный кислород растворялся в β -Zr, при этом не было обнаружено типичного α -Zr(O). В случае образцов, подвергавшихся воздействию воздуха, был обнаружен тонкий слой ZrN толщиной 2 мкм под Cr покрытием, под которым находился слой α -Zr(N, O).

На всех образцах из нержавеющей стали марки AISI 348 отмечалось значительное отслоение оксида. При визуальном контроле наблюдались различные цвета и структуры окисленных торцевых заглушек. Торцевые заглушки были изготовлены на месте из сплава AISI 304L. Анализ среза показал, что толщина стенки образцов уменьшилась. Это особенно четко проявилось в случае образца SS-TS-05, испытанного при 1400°C. В то время как внешний оксидный слой (Fe₃O₄) не имел адгезии и отслоился, внутренний оксидный слой (обозначенный в ТИК как FeCr₂O₄) оставался плотным и однородным и частично защищал покрываемую сталь.

ТАБЛИЦА 29. ВИЗУАЛЬНАЯ ОЦЕНКА И МЕТАЛЛОГРАФИЯ ПЛАСТИНЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ ПОСЛЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА

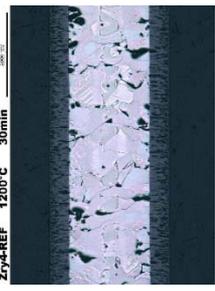
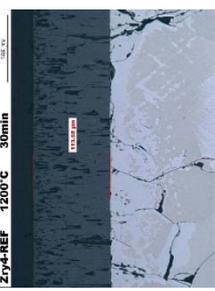
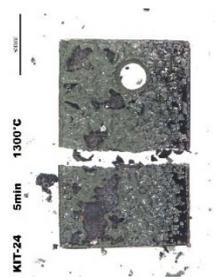
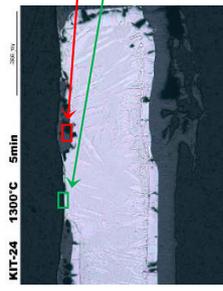
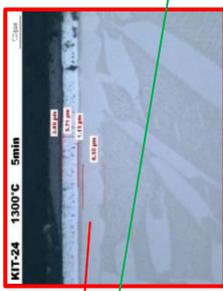
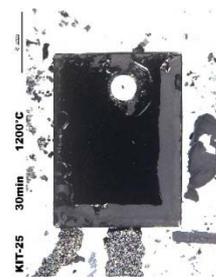
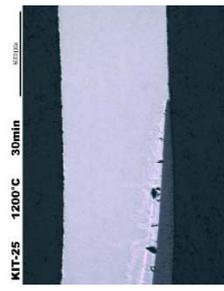
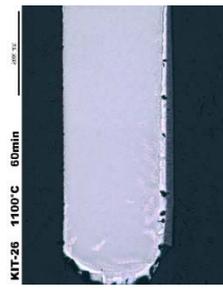
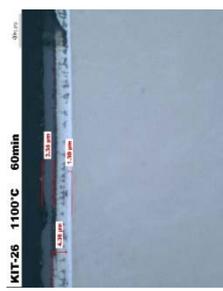
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	Фотография	Микроструктура среза		Микроструктура среза – детальная
				Зр4-REF	КПТ-24	
Zr4-REF, без покрытия	1200	30				—
Zr4-REF, с покрытием МАХ	1300	5				
Zr4-REF, с покрытием МАХ	1200	30				—
Zr4-REF, с покрытием МАХ	1100	60				—

ТАБЛИЦА 29. ВИЗУАЛЬНАЯ ОЦЕНКА И МЕТАЛЛОГРАФИЯ ПЛАСТИНЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ ПОСЛЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА (ПРОДОЛЖЕНИЕ)

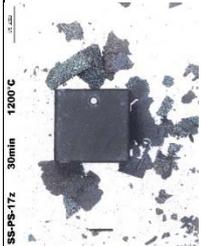
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	Фотография	Микроструктура среза	Микроструктура среза – детальная	Обозначение
AISI 348 SS-PS-17z (без охлаждения в ледяной воде)	1200	30		—	—	—

ТАБЛИЦА 30. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ (БЕЗ ПОКРЫТИЯ, С CR ПОКРЫТИЕМ, АІSІ 348) ПОСЛЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА

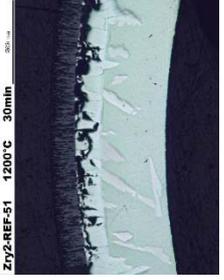
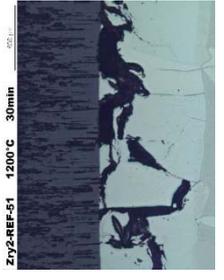
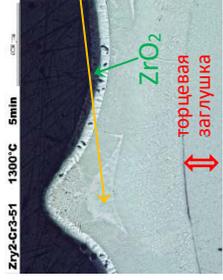
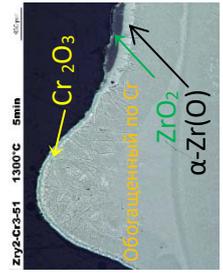
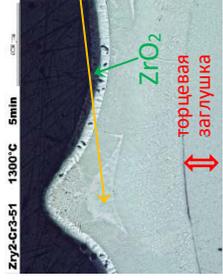
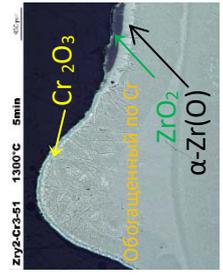
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	Фотография	Микроструктура среза	Микроструктура среза – детальная
Zr ₂ -ЭТАЛ-51 без покрытия	1200	30			
Zr ₂ -ЭТАЛ-51 без покрытия	1300*	5			
Zr ₂ -Cr3-51 с PVD CR покрытием	1300*	5			

ТАБЛИЦА 30. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ (БЕЗ ПОКРЫТИЯ, С Cr ПОКРЫТИЕМ, А ISl 348) ПОСЛЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА (ПРОДОЛЖЕНИЕ)

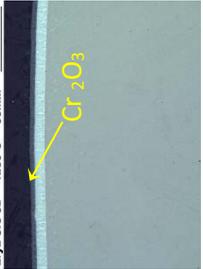
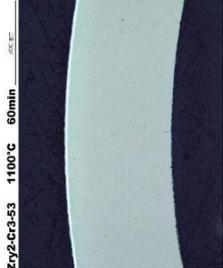
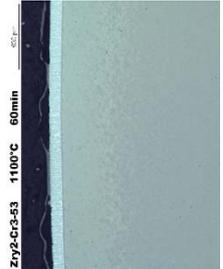
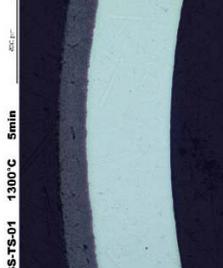
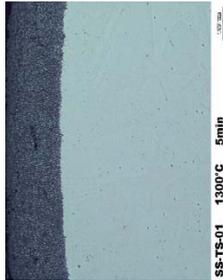
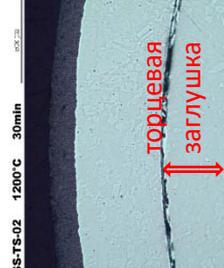
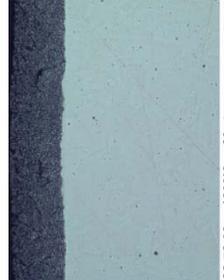
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	Фотография	Микроструктура среза	Микроструктура среза – детальная
Zr ₂ -Cr3-52 c PVD охлаждения в ледяной воде)	1200	30			
Zr ₂ -Cr3-53 c PVD Cr покрытием	1100	60			
АISI 348 SS-TS-01	1300	5			
АISI 348 SS-TS-02	1200	30			

ТАБЛИЦА 30. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ (БЕЗ ПОКРЫТИЯ, С Cr ПОКРЫТИЕМ, AISI 348) ПОСЛЕ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА (продолжение)

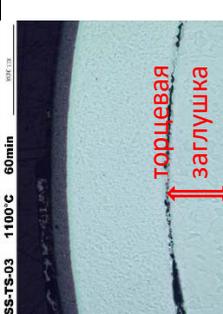
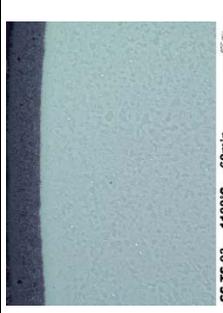
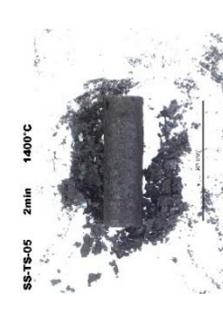
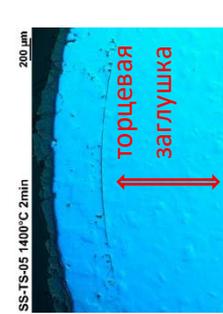
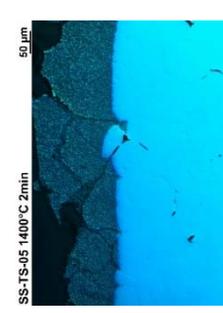
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	Фотография	Микроструктура среза	Микроструктура среза – детальная	Обозначение
AISI 348 SS-TS-03	1100	60				—
AISI 348 SS-TS-05	1400	2				—

ТАБЛИЦА 31. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ ИЗ Zr1%Nb С PVD Cr ПОКРЫТИЕМ ПОСЛЕ ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА И ВОЗДУХА

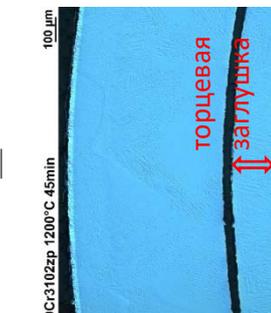
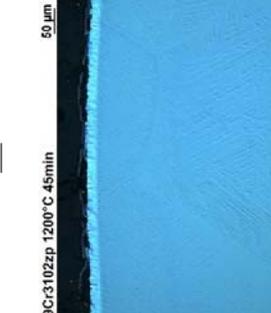
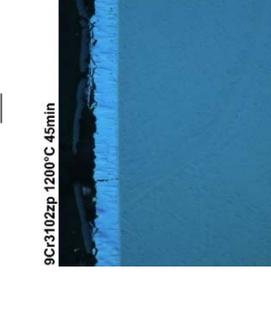
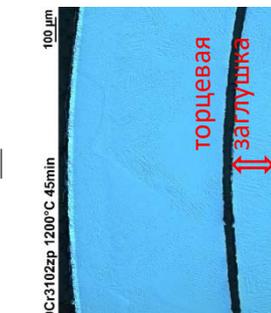
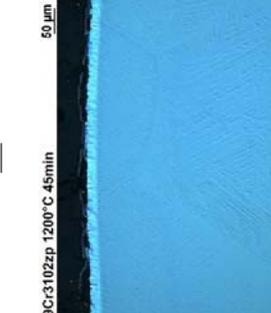
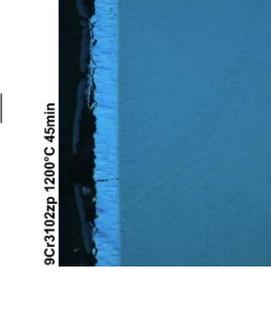
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	10x	20x	50x
9Cr3101	1200	30			
9Cr3102z (без охлаждения в ледяной воде)	1200	45			

ТАБЛИЦА 31. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ ИЗ Zr1%Nb С PVD Cr ПОКРЫТИЕМ ПОСЛЕ ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА И ВОЗДУХА (продолжение)

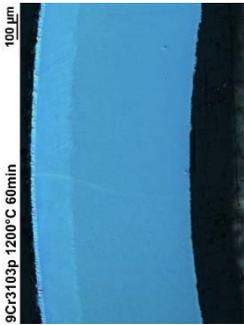
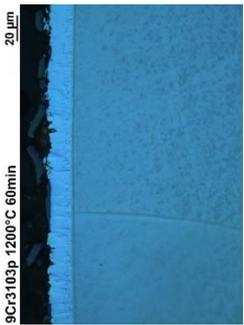
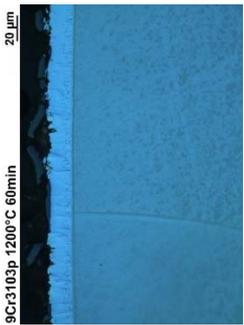
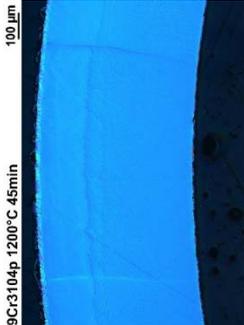
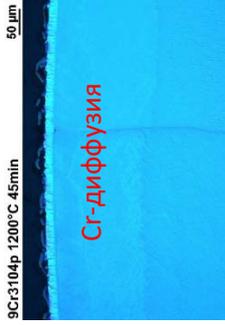
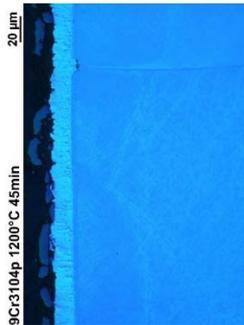
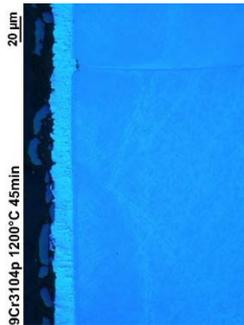
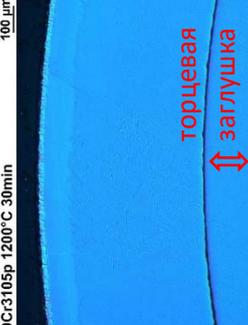
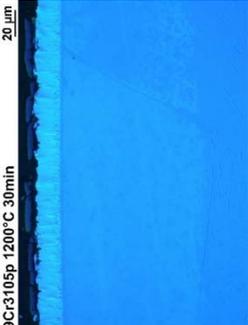
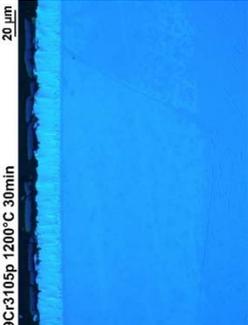
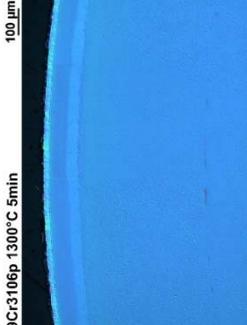
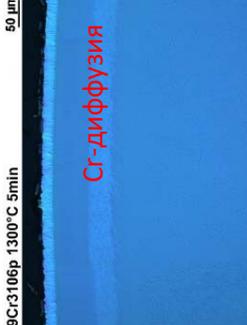
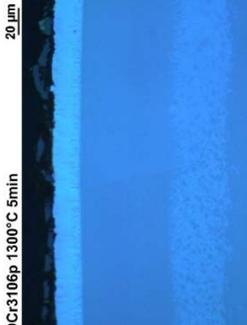
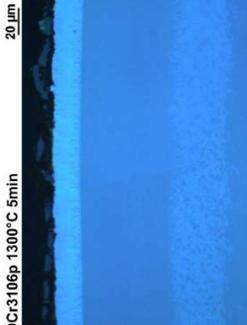
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	Увеличение			
			10x	20x	50x	50x
9Cr3103	1200	60				
						
9Cr3105	1200	30				
						

ТАБЛИЦА 31. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ ИЗ Zr1%Nb С PVD Cr ПОКРЫТИЕМ ПОСЛЕ ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА И ВОЗДУХА (продолжение)

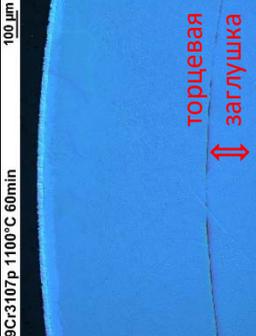
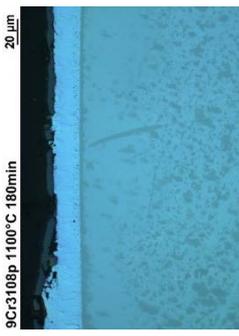
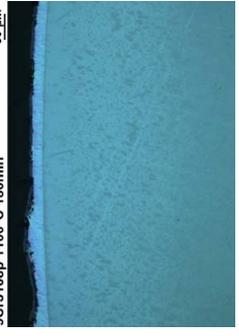
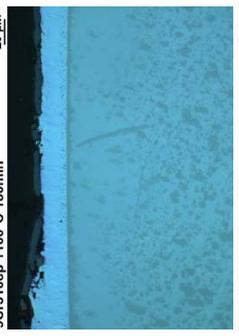
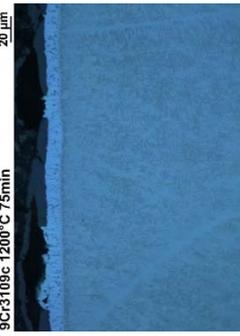
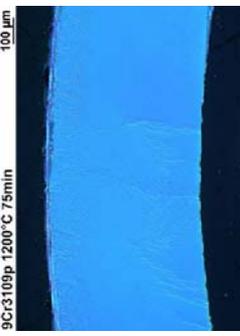
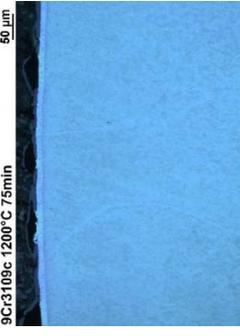
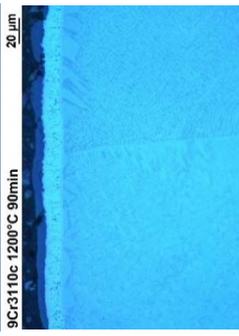
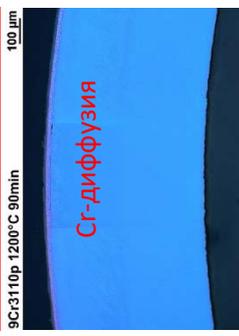
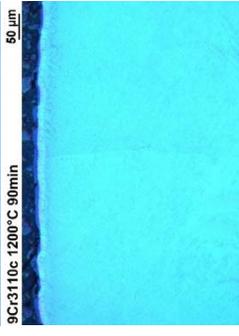
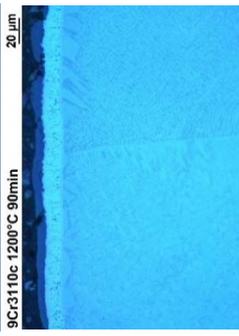
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	50x			
			10x	20x	20x	50x
9Cr3107	1100	60				
						
9Cr3109	1200	75				
						

ТАБЛИЦА 31. ТРУБЧАТЫЕ ОБРАЗЦЫ ИЗ Zr1%Nb С PVD Cr ПОКРЫТИЕМ ПОСЛЕ ОКИСЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ ВОДЯНОГО ПАРА И ВОЗДУХА (продолжение)

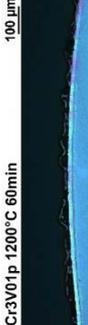
Обозначение	Темп. [°C]	Время [мин]	10x	20x	50x
ВОЗДУХ – 9Cr3V01 (без охлаждения в ледной воде)	1200	60			
					
					

ТАБЛИЦА 32. РЕЗУЛЬТАТЫ ВТ ИСПЫТАНИЙ ПЛАСТИНЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ

Обозначение	Т [°С]	Время [мин]	ЭПЧО-КП [%]	ПМ-КП [мг/дм ²]	ПМ-экл. [мг/дм ²]	dL [%]	Ох [мкм]	α-Zr(O) [мкм]	Изм. HV 0,1	Н [млн ⁻¹]
Zr ₂ -ЭТАЛ без покрытия	1200	30	43,4	2820	2281	2,33	113,6	остальная часть	545	29
AISI 348 SS-PS-17z	1200	30	43,0	2791	214	-0,50	—	—	153	—
Zr ₄ -4 КП-24 с покрытием МАХ-фаза	1300	5	30,6	1984	2041	не прошел проверку	3,9	4,8	583	685
Zr ₄ -4 КП-25 с покрытием МАХ-фаза	1200	30	44,3	2874	2509	2,36	4,4	4,3	281	120
Zr ₄ -4 КП-26 с покрытием МАХ-фаза	1100	60	37,1	2411	464	-0,34	3,4	5,8	265	52

Примечание: z – без охлаждения в ледяной воде

ТАБЛИЦА 33. РЕЗУЛЬТАТЫ ВТ ИСПЫТАНИЙ ТРУБЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ

Обозначение	Т [°С]	Время [мин]	ЭПЧО- КП [%]	ПМ-КП [мг/дм ²]	ПМ-эксп. [мг/дм ²]	dL [%]	Ох [мкм]	Ст покр. [мкм]	Изм. HV 0,1	Н [млн ⁻¹]	О [%]	ИСК1 [%]	ИСК2 [%]	Нагрузка	
														1 [Н]	2 [Н]
ZrO ₂ -ЭТАЛ-51 без покрытия	1200	30	21,7	2805	2491	1,10	—	—	500	—	—	0,05	0,1	125	132
ZrO ₂ -Cr3-51 с покрытием	1300	5	16,2	2088	1260	0,69	46,1	59,4	340	87	—	0,44	5,95	196	336
ZrO ₂ -Cr3-52z с покрытием	1200	30	21,7	2801	1336	0,60	8,4	17,5	197	38	0,1273	16,68	16,19	312	307
ZrO ₂ -Cr3-53 с покрытием	1100	60	18,6	2394	1056	0,46	4,1	18,3	256	356	0,1113	7,16	7,96	452	411
AISI 348 SS- TS-01	1300	5	15,7	2026	1687	0,71	168	485*	150	5,9	—	17,04	18,12	183	174
AISI 348 SS- TS-02	1200	30	21,9	2823	938	0,47	133	516*	145	8,3	—	17,06	18,24	166	190
AISI 348 SS- TS-03	1100	60	18,7	2419	1114	0,42	96	538*	162	9,2	—	11,49	10,6	213	183
AISI 348 SS- TS-05	1400	2	12,7	1644	3278	0,46	—	—	160	12,1	—	18,55	19,59	112	134

Примечание:
* – остаточная толщина стенки;
Z – без охлаждения в ледяной воде.

ТАБЛИЦА 34. ИЗМЕРЕННЫЕ ПАРАМЕТРЫ ТРУБЧАТЫХ ОБРАЗЦОВ ИЗ Zr1%Nb С St ПОКРЫТИЕМ ПОСЛЕ VT ИСПЫТАНИЙ

Обозначение	Т [°C]	Время [мин]	ЭПЧО- КП [%]	ПМ-КП [мг/дм ²]	ПМ-эксп. [мг/дм ²]	dL [%]	Ох [мкм]	Ст покр. [мкм]	Изм. HV 0,1	Н [млн ⁻¹]	О [%]	ИСК1 [%]	ИСК2 [%]	Нагрузка 1 [Н]	Нагрузка 2 [Н]
9Cr3101	1200	30	21,9	2831	183	0,02	—	—	—	—	0,12	—	—	—	—
9Cr3102z	1200	45	26,7	3451	160	0,28	5,4	19,2	—	29	0,10	18,45	18,28	328	308
9Cr3103	1200	60	30,8	3974	231	0,32	8,4	14,1	203	40	0,15	8,91	10,58	414	406
9Cr3104	1200	45	27,0	3486	220	0,27	7,0	14,3	205	32	0,15	8,20	7,17	364	372
9Cr3105	1200	30	22,1	2857	125	0,12	5,4	20,0	196	18	0,095	15,40	12,70	373	377
9Cr3106	1300	5	15,0	1934	115	0,11	5,6	20,9	184	12	0,096	4,92	4,53	348	350
9Cr3107	1100	60	18,7	2407	70	0,07	4,3	22,2	191	19	0,085	17,08	16,65	428	426
9Cr3108	1100	180	32,2	4157	144	0,18	5,3	20,4	208	25	0,095	16,86	17,08	461	466
9Cr3109	1200	75	34,2	4417	419	0,70	—	—	395	66	0,49	7,21	1,41	584	466
9Cr3110	1200	90	37,2	4804	434	0,82	—	—	478	55	0,86	0,20	0,17	373	380
9Cr3111	1300	9	19,2	2478	412	0,46	—	—	—	47	0,097	7,48	5,28	371	369
9Cr3112	1300	9	18,6	2396	155	0,30	—	—	204	12	0,10	7,66	7,77	378	373
9Cr3113	1100	480	52,0	6710	375	1,00	—	—	391	57	0,54	0,58	1,07	478	461
9Cr3V01	1200	60	воздух	воздух	330	0,40	—	—	—	6,4	—	16,87	18,1	355	311

После ВТ испытания образец высушивался при 90°C, а затем взвешивался. По результатам измерения температуры были рассчитаны значения ПМ-КП (привес массы — по Каткарт-Павелу) и ЭПЧО-КП (эквивалентная прореагировавшая часть оболочки — по Каткарт-Павелу). Затем проводился разрушающий анализ. Был проведен анализ среза и измерены толщины оксидного слоя, слоя α -Zr(O), покрытия и оставшейся стенки. Микротвердость по Виккерсу измерялась в двадцати точках в середине стенки (2×10 точек). Одно или два кольца высотой 0,5 мм были проанализированы на содержание Н. Для измерения содержания кислорода в исходном β -Zr было подготовлено кольцо без оксида или покрытия (верхний слой образца был удален путем механической обработки). При испытаниях на сжатие кольца при 135°C использовались два 7 мм кольца. Все результаты показаны в таблице 29 (пластинчатые образцы), таблице 30 (трубчатые образцы) и таблице 31 (Zr1%Nb - трубчатые образцы).

На приведенных ниже рисунках отражены результаты, представленные в таблицах. Привес массы после эксперимента, содержание водорода, микротвердость и содержание кислорода отображены как функция температуры или ЭПЧО. Для оценки результатов использовались также рассчитанные значения привеса в соответствии с измеренными температурами и корреляция Каткарта-Павела (изначально разработанная для сплава Zry-4).

Для эталонного трубчатого образца без покрытия экспериментальный привес массы было примерно на 12 % ниже прогнозируемого. Это считается допустимым отклонением. Для пластинчатого образца разница была выше вследствие окисления по всей толщине стенки (19%). Наводороживание было очень низким, до 30 млн⁻¹. Результаты анализа микротвердости (HV0,1 = 500–550) подтвердили, что в середине стенки, где был выполнен анализ, присутствует фаза α -Zr(O).

Покрытие из МАХ-фазы показало себя как защитное покрытие только при температуре 1100°C, при более высоких температурах 1200 и 1300°C результаты были весьма схожими с результатами для образцов без покрытия. Поглощение водорода подложкой было результатом повреждений покрытия и поэтому измеренные значения оказались высокими: 120 млн⁻¹ (для 1200°C) и 685 млн⁻¹ (для 1300°C). Результаты анализа микротвердости для температур 1100 и 1200°C показали значения HV0,1 от 260 до 280, которые являются типичными значениями, подтверждающими наличие пластичного β -Zr. С другой стороны, испытание при температуре 1300°C дало значение HV0,1, составлявшее 583. Это очень высокое значение микротвердости наряду с высоким содержанием водорода свидетельствуют об осаждении гидридов и крайней хрупкости образца.

Образцы из Zr1%Nb с Cr покрытием показали наименьший привес массы и очень низкое содержание водорода (до 60 млн⁻¹) во всех испытаниях. Микротвердость была очень низкой – приблизительно HV0,1 = 200. В особых случаях, которые значительно превышали запланированную продолжительность: 1100°C/480 мин, 1200°C/75 мин, 1200°C/90 мин, микротвердость оказалась более высокой. Значение привеса массы не является полностью репрезентативным параметром для образцов из Zry-2 с Cr покрытием, так как использовались торцевые заглушки без покрытия. Наблюдается увеличение измеренного содержания водорода в образцах из Zry-2 с Cr покрытием, снабженных торцевыми заглушками без покрытия. Торцевые заглушки без покрытия во время переходного процесса выделяют больше свободного водорода по сравнению с покрытыми участками образца. Результаты показывают, что эти свободные атомы водорода в большей степени поглощаются оболочкой с покрытием, что позволяет предположить существование потенциальных проблем, связанных с повышенным наводороживанием при использовании образца с Cr покрытием в паровой или водородной атмосфере в зонах с повышенной концентрацией свободного водорода (например, в верхней части активной зоны или вблизи дистанционирующих решеток). Это явление необходимо дополнительно исследовать и объяснить механизмы наводороживания материалов оболочки с покрытием.

Сплав AISI 348 показал меньшие значения привеса массы, чем эталонные образцы, что в отчасти связано с отслаиванием оксидов. Содержание водорода в образце и микротвердость были самыми низкими.

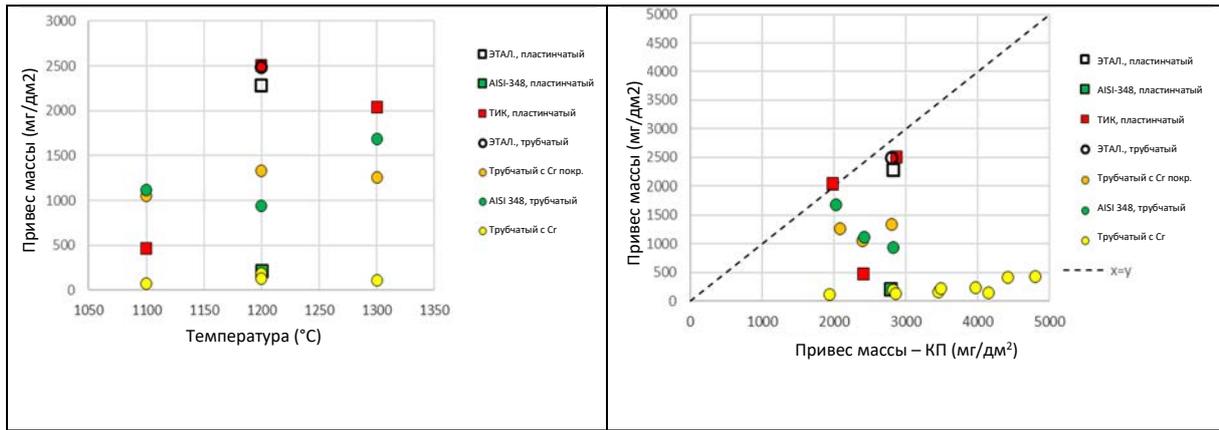


РИС. 79. Экспериментально измеренные значения привеса массы при различных температурах (слева) и расчетные значения привеса массы при использовании корреляции Катхарта-Павела (КП) (справа).

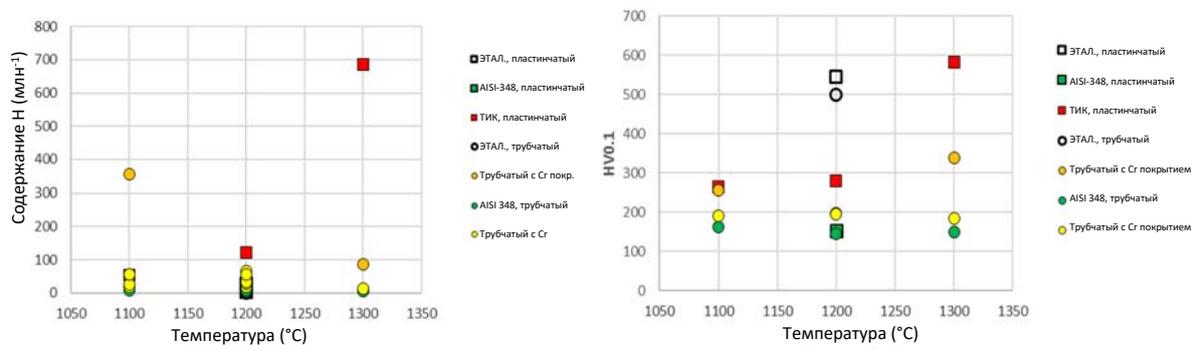


РИС. 80. Содержание водорода (слева) и микротвердость в середине стенки (справа) образцов при различных температурах и разных периодах воздействия.

Из трубчатых образцов (без покрытия, с Cr покрытием и из AISI 348) были вырезаны два 7 мм сегмента и при температуре 135°C было проведено испытание на сжатие кольца.

Образцы из Zr1%Nb с Cr покрытием были пластичными с наименьшей остаточной пластичностью около 4% в случае образца, подвергнутого воздействию при 1300°C/5 мин. При сравнении образцов из Zry-2 с Cr покрытием и из Zr1Nb с Cr покрытием содержание водорода было более высоким (356 млн⁻¹) при воздействии 1100°C/60 мин и температуре, превышавшей точку плавления Cr-Zr при воздействии 1300°C/5 мин и использовании Zry-2 в качестве подложки. Это также приводит к снижению пластичности. Образец, испытанный при температуре 1300°C, был хрупким. Все образцы из AISI 348 показали очень высокую остаточную пластичность, соответствующую низкому привесу массы (соответственно оставшейся толщины стенки). С другой стороны, значения максимальной нагрузки для всех образцов были одинаковыми и очень низкими: 150–200 Н.

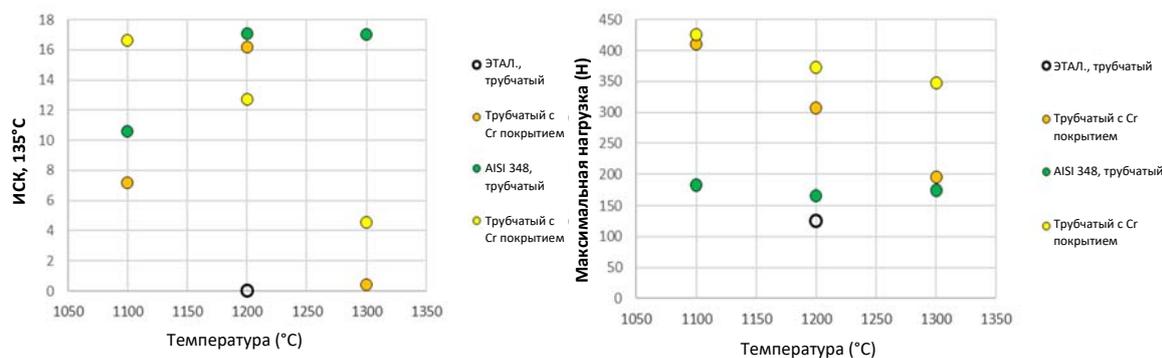


Рис. 81. Результаты испытаний на сжатие кольца (ИСК) при 135°C после охлаждения трубчатых образцов: остаточная пластичность (слева) и максимальная нагрузка (справа).

Было проведено более подробное исследование образцов из Zr1%Nb с Cr покрытием и определена зависимость остаточной пластичности от времени воздействия. Кроме того, были измерены экспериментальные значения эквивалентной прореагировавшей части оболочки (теоретическое значение для Zr сплавов) и соответствующие рассчитанные значения (с использованием корреляции Каткарта-Павела), микротвердость и содержание кислорода. Результаты представлены на приведенных ниже рисунках.

На рис. 82 показаны результаты испытаний остаточной пластичности в зависимости от времени воздействия. При температуре 1100°C «вязко-хрупкий-переход» (DBT) происходил в период от 180 до 480 минут воздействия (ЭПЧО-КП 17% для образцов без покрытия составляет около 50 мин). При температуре 1200°C образец становился хрупким после 60 – 75 минут воздействия (ЭПЧО-КП 17% для образцов без покрытия составляет около 18 мин). Данные на рис. 82 (справа) показывают, что стандартная методика, используемая для сплавов на основе Zr, не может быть использована для материалов с покрытием. Эти данные показывают, что измеренные значения привеса массы нельзя напрямую сравнивать с привесом массы образцов без покрытия. DBT для образцов с покрытием происходит при более низких значениях ЭПЧО, чем ЭПЧО 17%, что считается ограничением для образцов без покрытия и без поглощенного водорода. С другой стороны, на рис. 83 можно видеть очень хорошее согласие DBT с предельными значениями микротвердости (слева) и содержанием кислорода (справа) для сплава Zr1%Nb без покрытия. Рис. 84 (слева) показывает прямую связь привеса массы и содержания кислорода (за исключением точки образования эвтектики Cr-Zr). Поэтому можно сделать вывод, что существует предельное значение привеса массы, которое будет соответствовать предельной концентрации кислорода, достигнутой в предшествовавшем β -Zr. При достижении этого значения происходит DBT.

Привес массы образцов с покрытием можно прогнозировать, если будет достигнуто хорошее понимание кинетики окисления, как показано на рис. 84 (справа). Ввиду ограниченности экспериментов, проведенных в рамках настоящего КИ, невозможно разработать какую-либо надежную модель, описывающую кинетику окисления в соответствующем температурном диапазоне от 1000 до 1300°C, и необходима дальнейшая работа в будущем.

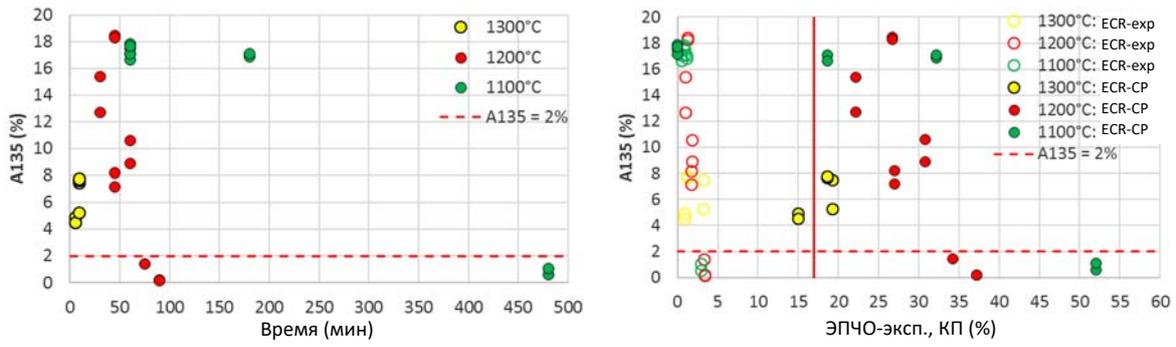


РИС. 82. Зависимость остаточной пластичности образцов из $Zr1\%Nb$ с Cr покрытием от времени (слева) и ЭПЧО (справа).

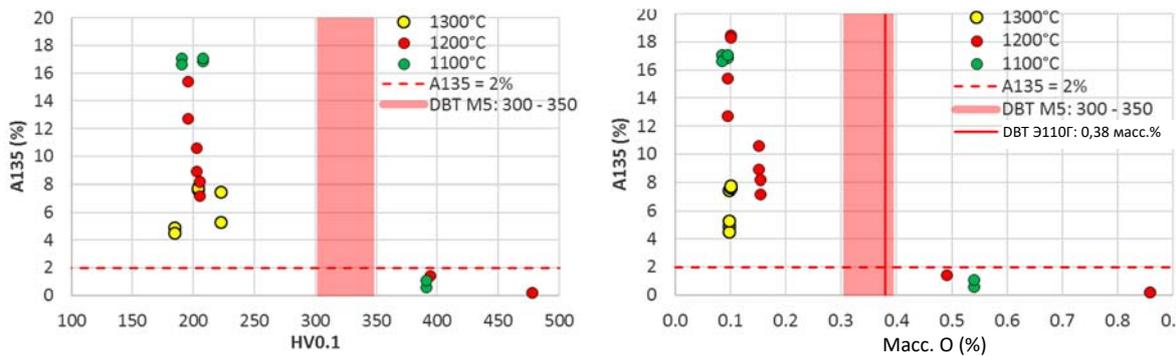


РИС. 83. Связь остаточной пластичности образцов из $Zr1\%Nb$ с Cr покрытием с микротвердостью (слева) и содержанием кислорода в предшествовавшем β -Zr (справа).

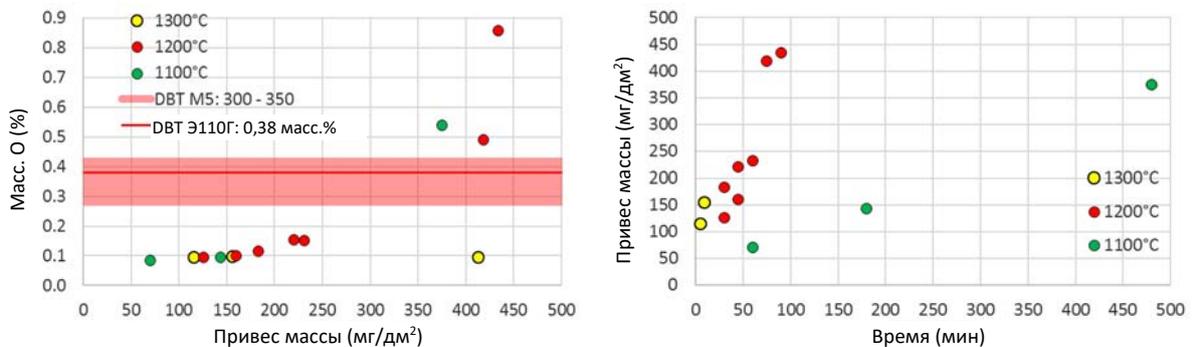


РИС. 84. Связь содержания кислорода в образцах $Zr1\%Nb$ с Cr покрытием с привесом массы (слева) и связь привеса массы с временем воздействия (справа).

Приведенные выше результаты свидетельствуют о том, что стандартная методология, использованная для материалов оболочки на базе Zr и основанная на экспериментальной оценке ЭПЧО, не применима к образцам с покрытием. С другой стороны, было показано, что ДВТ происходит при тех же предельных значениях микротвердости и содержания кислорода, что и в случае сплавов без покрытия. Для материалов оболочки с покрытием могут быть установлены новые критерии безопасности.

4.3. РЕЗУЛЬТАТЫ: VTT

4.3.1. Zry-2 с Cr покрытием

Три образца из Zry-4 с Cr покрытием, предоставленные от ЧТУ, подвергались воздействию потока пара: образец 1 при 1100°C в течение 60 минут, образец 2 при 1200°C в течение 30 минут и образец 3 при 1300°C в течение 5 минут. Данные по изменению массы представлены в таблице 35. При температурах от 1100 до 1200°C наблюдалось умеренное увеличение массы, хотя время воздействия уменьшилось до 30 мин. Наблюдаемое увеличение массы после воздействия при 1300°C было примерно в 6-20 раз выше по сравнению с ее увеличением при более низких температурах.

ТАБЛИЦА 35. РАСЧЕТНЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ МАССЫ (ΔW) ОБРАЗЦА ОТ ЧТУ ИЗ Zry-2 С Cr ПОКРЫТИЕМ ПОСЛЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ ПАРОМ

Обр. 1 Zry-2 1100°C / 60 мин.	Обр. 2 Zry-2 1200°C / 30 мин.	Обр. 3 Zry-2 1300°C / 5 мин.
$\Delta W = 0,46 \%$	$\Delta W = 1,37 \%$	$\Delta W = 8,59 \%$

Морфология образца из Zry-4 с Cr покрытием, подвергнутого воздействию пара при 1100°C в течение 60 минут, показана на рис. 85. Совокупная толщина покрытия и оксидных слоев составляла около 10 мкм. В целом наблюдаемое покрытие было непрерывным, но были обнаружены трещины между покрытием и оксидным слоем.

На рис. 86 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Zr, Sn, Cr и Fe. На рис. 87 показаны результаты анализа выбранных участков для исследования методом СЭМ-ЭДС. Тонкий слой Cr и Zr между покрытием и подложкой на картах исследования методом СЭМ-ЭДС на рис. 86 и на ВУ2 на рис. 87 показывает, что происходит диффузия Cr в сторону Zr подложки.

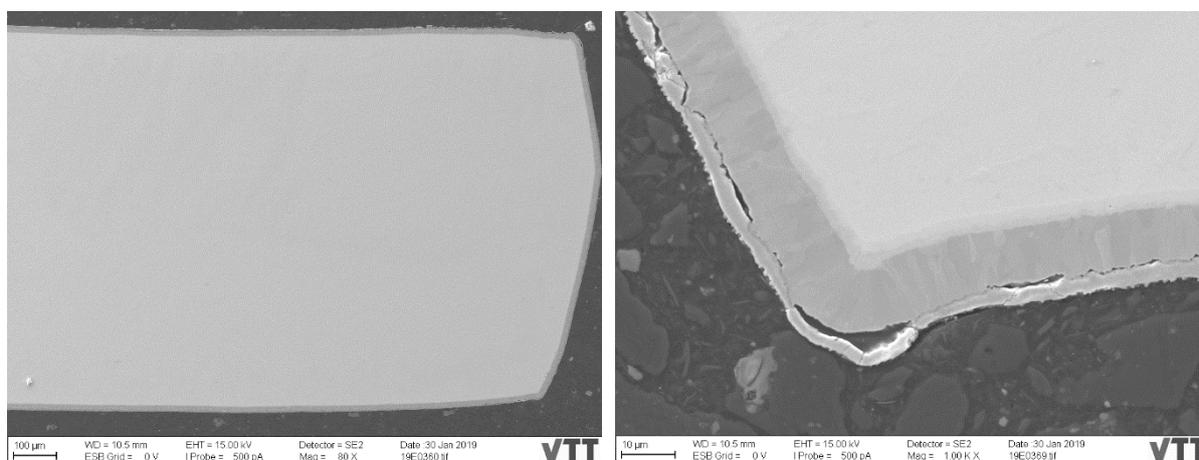


РИС. 85. ВЭ-изображения образца от ЧТУ из Zry-2 с Cr покрытием (1100°C, 60 мин).

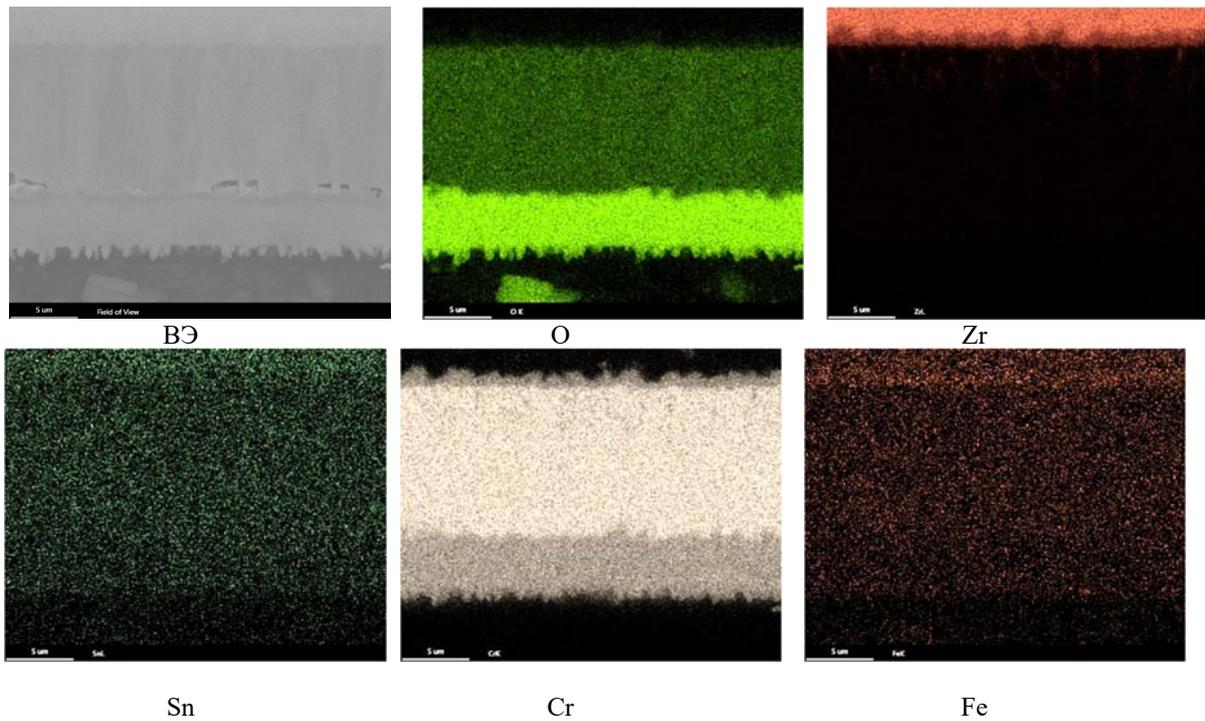
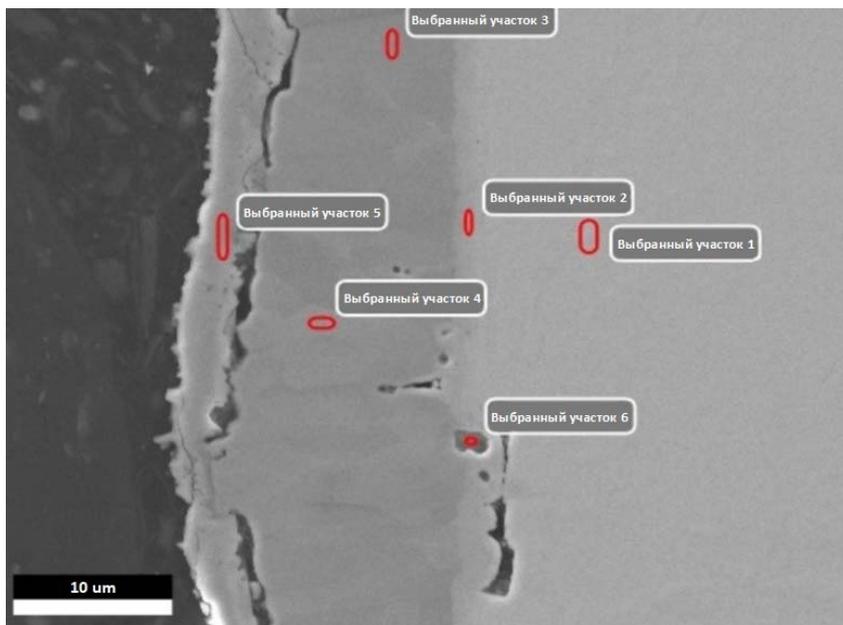


РИС. 86. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Zr, Sn, Cr и Fe в образце от ЧТУ из Zry-2 с Cr покрытием (1100°C, 60 мин).



	C K	O K	Si K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	—	1,7	—	94,1	1,3	2,0	0,3	0,5
Выбранный участок 2	—	2,3	—	38,6	0,3	56,7	1,8	0,4
Выбранный участок 3	—	3,0	0,2	—	0,2	96,2	0,5	—
Выбранный участок 4	—	3,1	0,1	—	0,1	96,2	0,4	—
Выбранный участок 5	—	27,3	0,2	—	0,1	72,2	0,2	—
Выбранный участок 6	26,0	3,5	1,0	15,8	0,2	52,8	0,8	—

РИС. 87. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца от ЧТУ из Zry-2 с Cr покрытием (1100°C, 60 мин). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

На рис. 88 показаны общий вид и подробные ВЭ-изображения образца от ЧТУ из Zr₂-2 с Cr покрытием, который подвергался воздействию при 1200°C в течение 30 минут. Совокупная толщина покрытия и оксидных слоев составляла около 15 мкм. Наблюдаемый слой покрытия был непрерывным. Как и в случае образца, испытанного при температуре 1100 °С, обнаружены трещины в слое оксида и между покрытием и оксидным слоем.

На рис. 89 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения O, Zr, Sn, Cr и Fe. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 90. Тонкий слой Cr и Zr между покрытием и подложкой на картах исследования методом СЭМ-ЭДС на рис. 89 и наблюдаемый на рис. 90 элементный состав Cr и Zr на ВУ2 показывают, что происходит диффузия Cr в сторону Zr подложки, как это также имело место при более низкой температуре 1100°C.

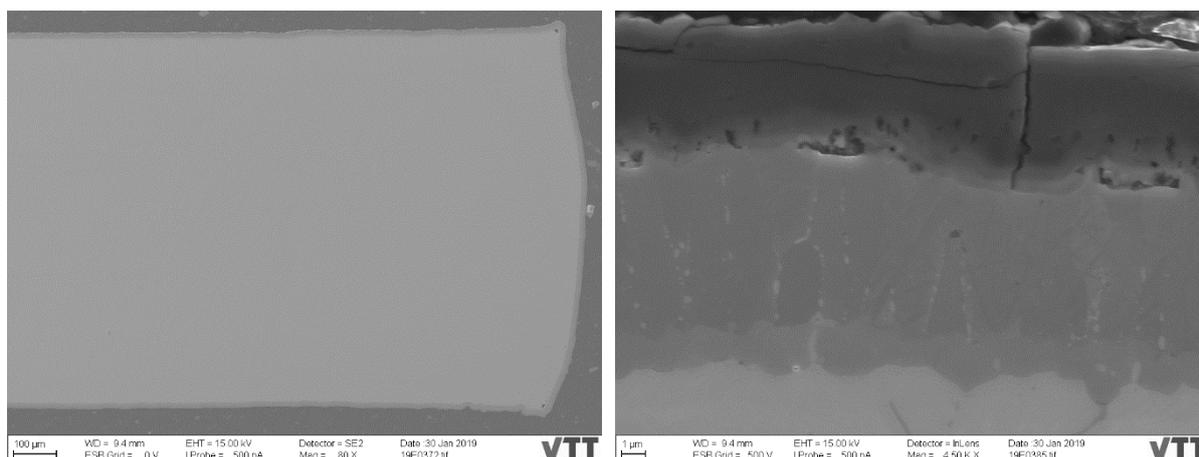


Рис. 88. ВЭ-изображения образца от ЧТУ из Zr₂-2 с Cr покрытием (1200°C, 30 мин).

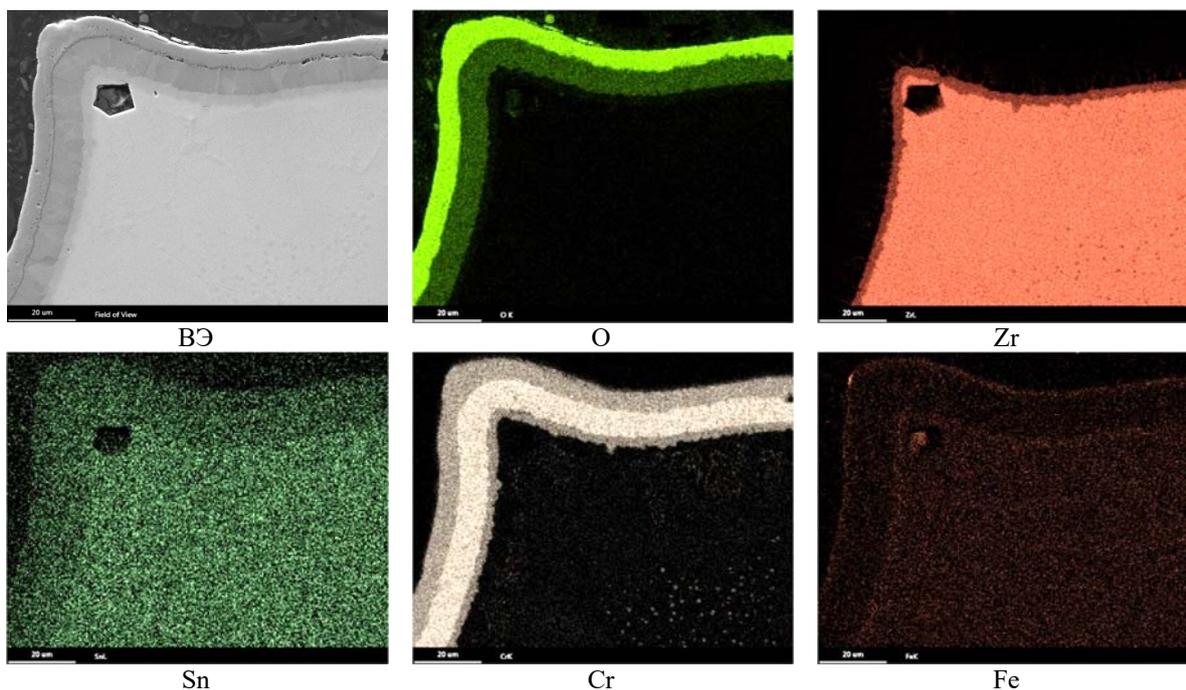
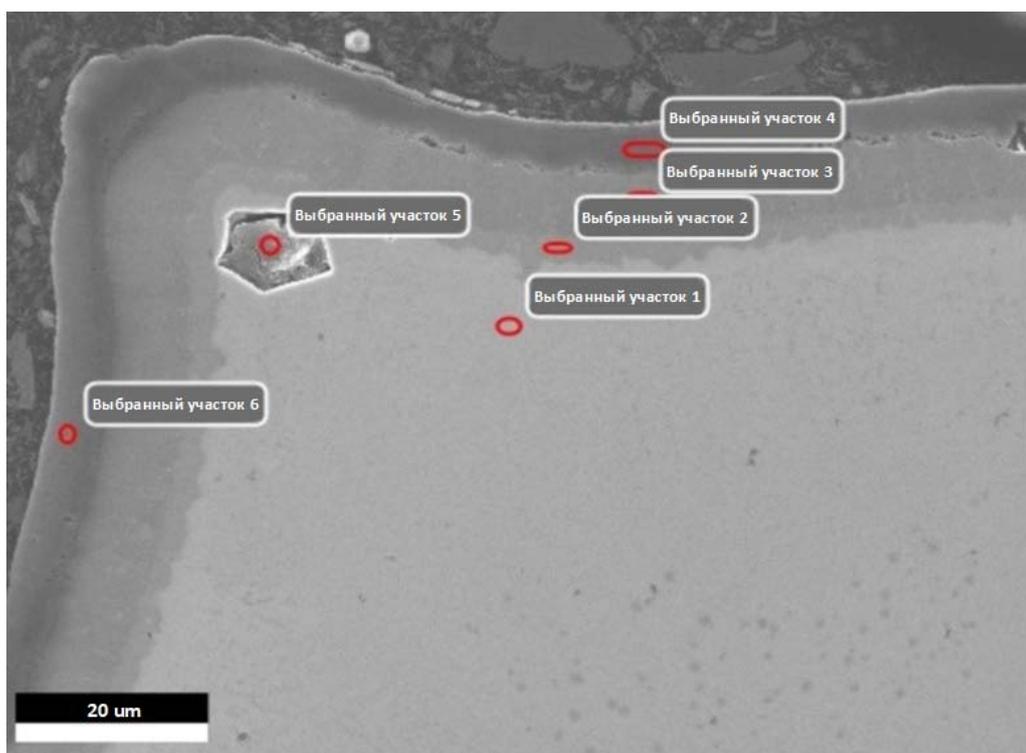


Рис. 89. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Zr, Sn, Cr и Fe в образце от ЧТУ из Zr₂-2 с Cr покрытием (1200°C, 30 мин).



	С К	О К	Al К	Si К	Zr L	Sn L	Ca К	Cr К	Fe К
Выбранный участок 1	—	2,1	—	—	93,7	1,4	—	2,1	0,8
Выбранный участок 2	—	2,2	—	—	38,3	0,4	—	58,6	0,5
Выбранный участок 3	—	3,3	—	—	0,3	0,2	—	96,2	—
Выбранный участок 4	—	28,2	0,2	0,1	—	0,2	—	70,8	0,5
Выбранный участок 5	60,7	16,3	0,5	1,6	2,2	—	2,9	2,4	13,4
Выбранный участок 6	—	26,7	0,5	0,2	—	—	0,2	71,3	1,1

РИС. 90. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца от ЧТУ из Zry-2 с Cr покрытием (1200°C, 30 min). Для количественного анализа использовались линии К- и L-серий рентгеновского излучения.

На рис. 91 показаны общий вид и подробные ВЭ-изображения образца от ЧТУ из Zry-2 с Cr покрытием, который подвергался воздействию при 1300°C в течение 5 минут. Толщина покрытия и оксидного слоя колебалась от 40 до 400 мкм. Покрытие было непрерывным, но после визуального изучения нескольких трещин подложки был сделан вывод, что во время подготовки образца могло произойти частичное отслоение покрытия от подложки.

На рис. 92 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения О, Zr, Sn, Cr и Fe, на которых оксидный слой находится сверху. На карте распределения Cr насыщенные Cr линейные образования в подложке являются результатом шлифовки и полировки во время подготовки образца. Результаты анализа выбранных для исследования методом СЭМ-ЭДС участков показаны на рис. 93.

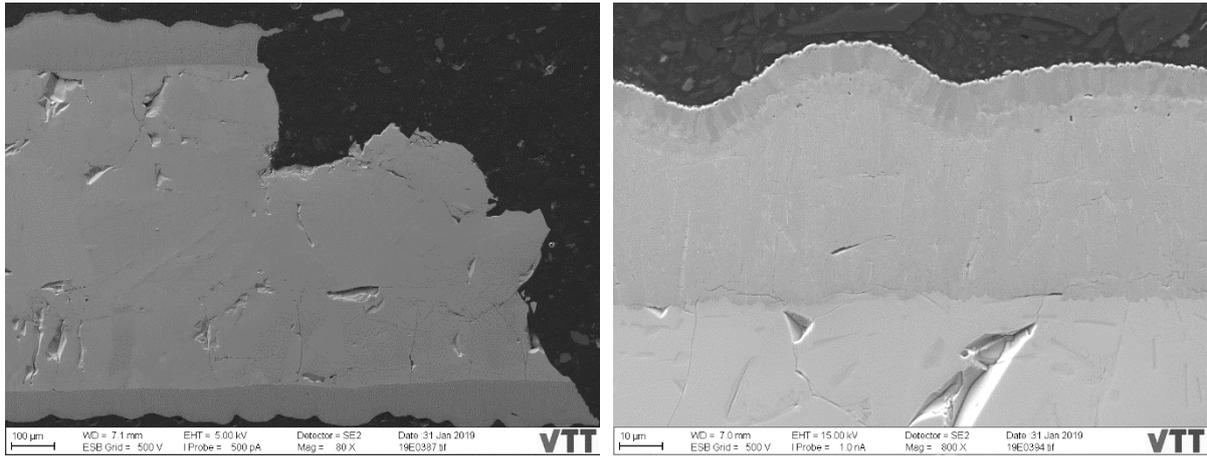


РИС. 91. ВЭ-изображения образца от ЧТУ из Zr₂ с Cr покрытием (1300°C, 5 мин).

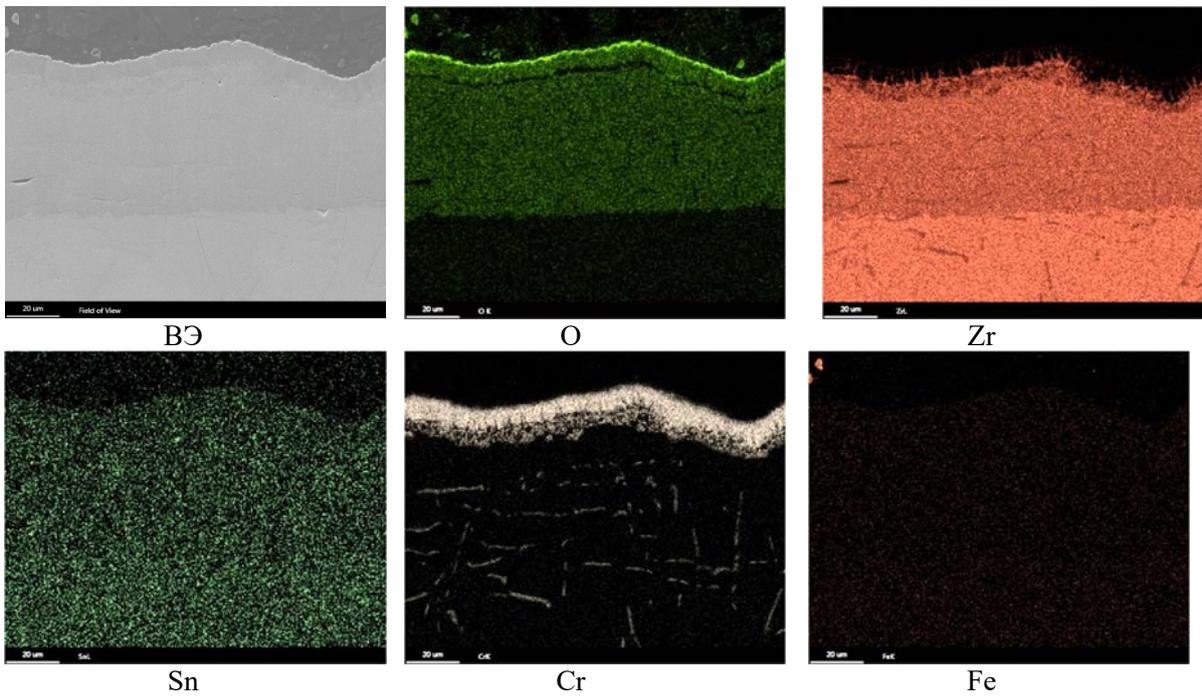
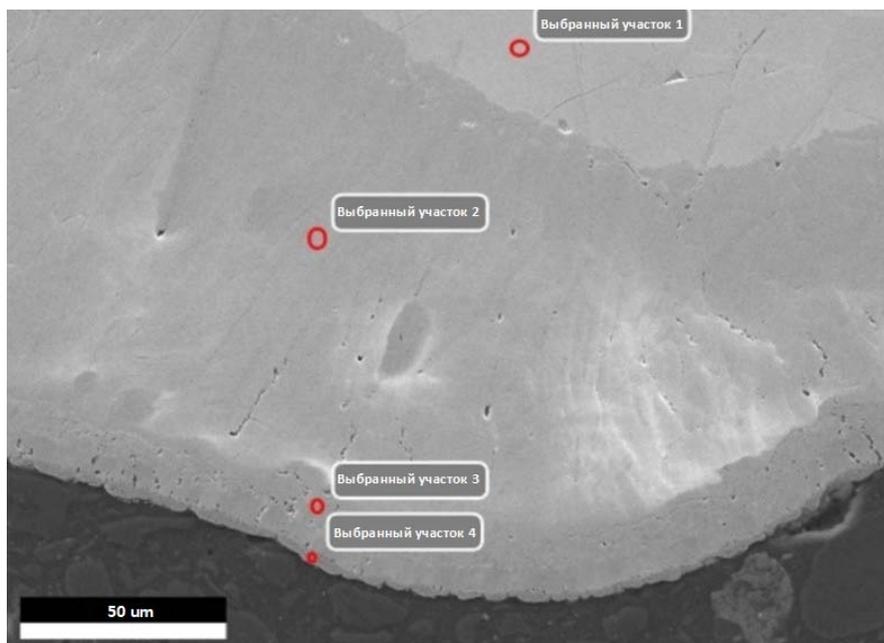


РИС. 92. СЭМ-ЭДС карты, показывающие распределение O, Zr, Sn, Cr и Fe в образце от ЧТУ из Zr₂ с Cr покрытием (1300°C, 5 мин).



	O K	Zr L	Sn L	Cr K	Fe K
Выбранный участок 1	7,2	91,3	1,5	—	—
Выбранный участок 2	24,5	72,7	1,2	0,8	0,8
Выбранный участок 3	11,0	35,9	0,4	51,2	1,5
Выбранный участок 4	25,9	—	0,1	73,5	0,5

РИС. 93. Определенный методом СЭМ-ЭДС анализа химический состав (масс.%) ВУ образца от ЧТУ из Zry-2 с Cr покрытием (1300°C, 5 min). Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

4.3.2. Zry-4 с PVD CR/Cr₂ALC/Cr (МАХ-фаза) покрытием

В таблице 36 приведены расчетные изменения массы образцов от ТИК из Zry-4 с покрытием МАХ-фаза (Cr₂ALC) после воздействия паром при различных температурах. С повышением температуры испытания масса образцов увеличивалась, хотя время воздействия уменьшалось соответственно с 60 мин до 5 мин. При температуре 1300°C привес массы составил 30% с учетом всего отслоившегося оксида.

ТАБЛИЦА 36. ИЗМЕРЕННЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ МАССЫ (ΔW) ОБРАЗЦОВ ИЗ Zry -4 С ПОКРЫТИЕМ МАХ-ФАЗА ПОСЛЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ ПАРОМ

SPP4 1100°C / 60 мин	SPP5 1200°C / 30 мин	SPP6 1300°C / 5 мин
Δw 6,57 %	Δw 15,19 %	Δw 30,36 %

Как показано на рис. 94, после воздействия на обеих сторонах образца SPP 4 по-прежнему видно покрытие МАХ-фаза (см. рис. 94 а), красные стрелки). На основании наблюдений можно сделать вывод, что оксид быстро распространялся в направлении центра от края образца. Однако на рис. 94 б) почти не наблюдается образования оксида под неповрежденным покрытием. В области, отмеченной красным эллипсом на рисунке, было обнаружено несколько трещин в покрытии и образовались оксиды. На участке, на который указывает стрелка, где был нарушен только верхний слой покрытия, образования оксида обнаружено не было (рис. 94 б)). Кроме того, не было обнаружено хрупкого α-Zr, вероятнее всего, вследствие того, что не произошло проникновения кислорода.

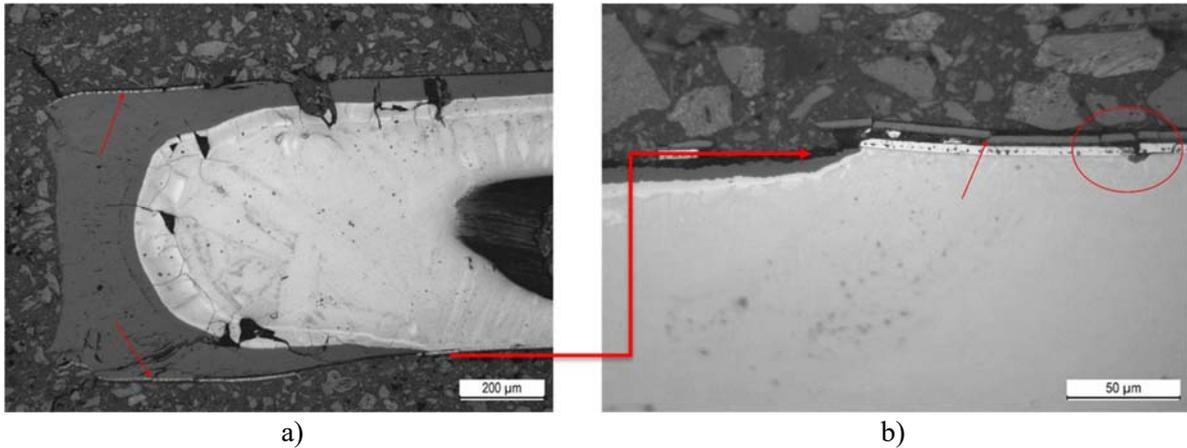


РИС. 94. Образец SPP 4 после воздействия паром при температуре 1100°C в течение 60 минут.

Наблюдаемое состояние покрытия под образцом SPP 4 кажется нетронутым. Хрупкий α -Zr отсутствует, т. е. отсутствует окисление. Однако, по-видимому, произошло сильное рассеяние покрытия из его первоначального слоя. Это, скорее всего, связано с тем, что произошло рассеяние Al из слоя покрытия, как показывают результаты анализа методом СЭМ-ЭДС, представленные на рис. 95. Очевидно, что юстировка образца во время воздействия не оптимальна, что приводит к неравномерному поведению. Эта проблема рассматривается для того, чтобы обеспечить одинаковую среду испытаний на обеих сторонах образца.

На рис. 95 показаны СЭМ-ЭДС карты образца SPP 4, показывающие интересные элементы и полутоновое изображение участка, на котором покрытие MAX-фаза было не повреждено и еще не сформировался ZrO_2 . Как уже упоминалось, следует отметить, что произошло интенсивное рассеяние Al из предполагаемого однородного первоначального среднего слоя, т.е. из первоначального слоя Cr_2AlC . В связи с этим будет очевидной необходимость также определить характеристики образца, не подвергшегося воздействию, с тем чтобы понять поведение Al при этой температуре.

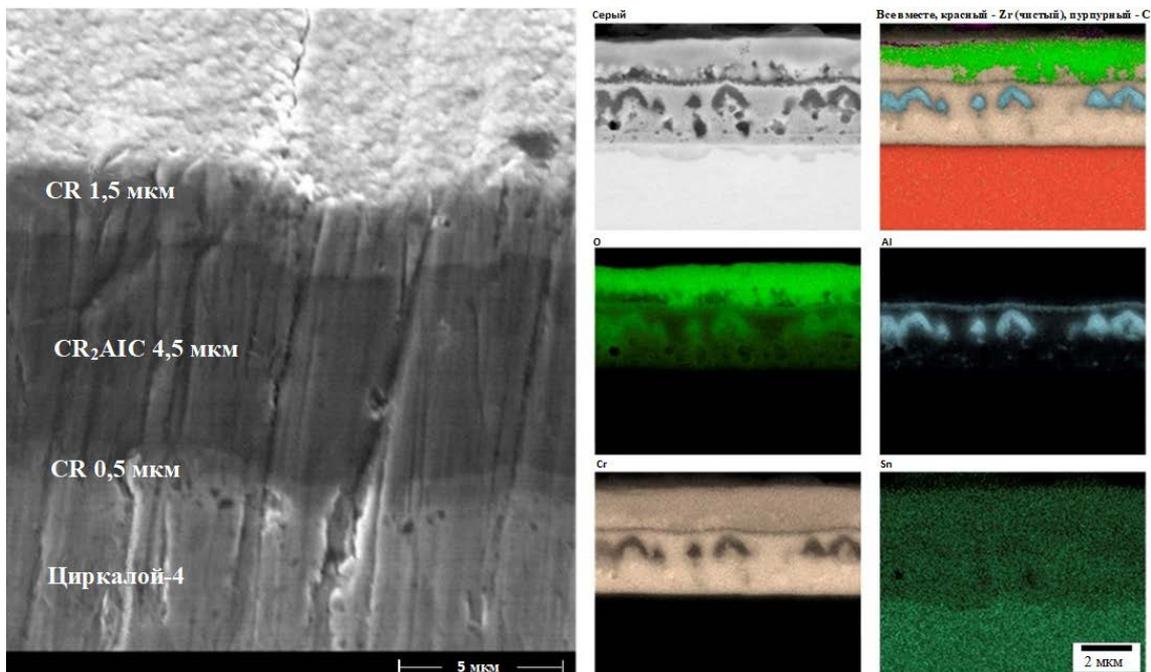


РИС. 95. Исходная (до воздействия) конфигурация покрытия образца из Zr-4 с покрытием MAX-фаза (слева) и СЭМ-ЭДС карты распределения отдельных элементов после воздействия при температуре 1100°C (справа).

Морфология поверхности образца SPP 4 показана на рис. 96. На поверхности этого образца после воздействия при 1100°C в течение 60 минут были обнаружены некоторые выделения. Для определения характеристик наблюдаемого выделения, отмеченного на рис. 96 красным кругом, был проведен анализ методом СЭМ-ДРС. Анализ методом СЭМ-ДРС показал, что выделения на поверхности образца могут представлять собой Zr_5Sn_4 (55,5 ат.% Sn) – фазу, существование которой в модели материала было подтверждено в открытой литературе [83].

Анализ методом СЭМ-ЭДС того же самого выделения показал присутствие только Sn, Zr и небольших количеств O. Если предполагать, что это выделение представляет собой интерметаллическое соединение, то можно допустить, что этим интерметаллическим соединением является Zr_5Sn_4 .

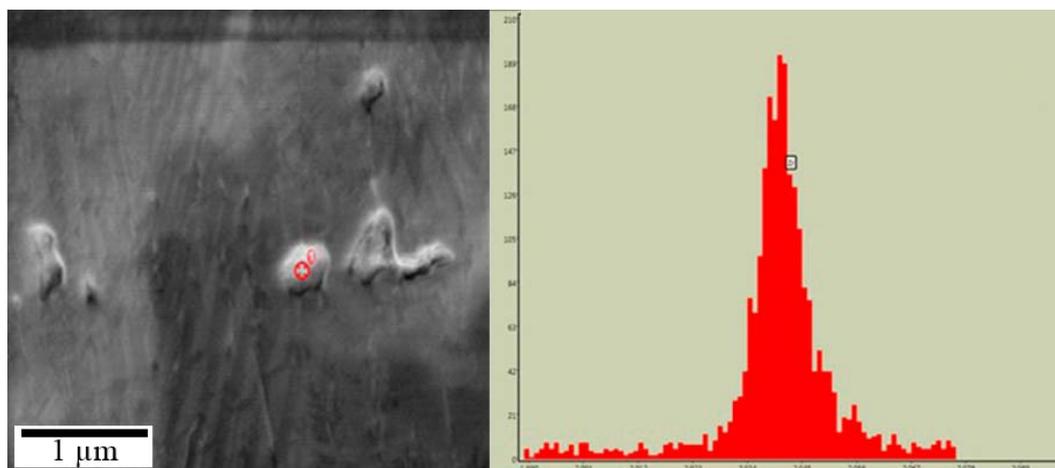


РИС. 96. Расположение выделений, наблюдаемое на поверхности образца SPP 4 (слева), и результаты соответствующего анализа этого выделения методом СЭМ-ДРС (справа).

Образец SPP 5 подвергался воздействию при 1200°C в течение 30 минут. После воздействия внешний оксидный слой представлял собой ZrO_2 и в нем имелись некоторые явные трещины, скорее всего, возникшие из-за различия коэффициентов теплового расширения различных фаз. Толщина однородной части оксидной пленки по оценкам составляет около 150 мкм. На рис. 97 показано изображение среза. Область, обозначенная красным прямоугольником, вероятно, представляет собой α -Zr, ниже нее – β -Zr, а выше α -Zr – ZrO_2 . Результаты линейного сканирования методом СЭМ-ЭДС по слою оксида и предполагаемому α -Zr в образце SPP 5 показаны на рис. 98. Следует отметить, что предполагаемый α -Zr содержит больше кислорода, чем исходный β -Zr (наблюдаемое изменение наклона зеленой кривой). Идентификация α/β -Zr основана на данных, описанных в [83, 84].

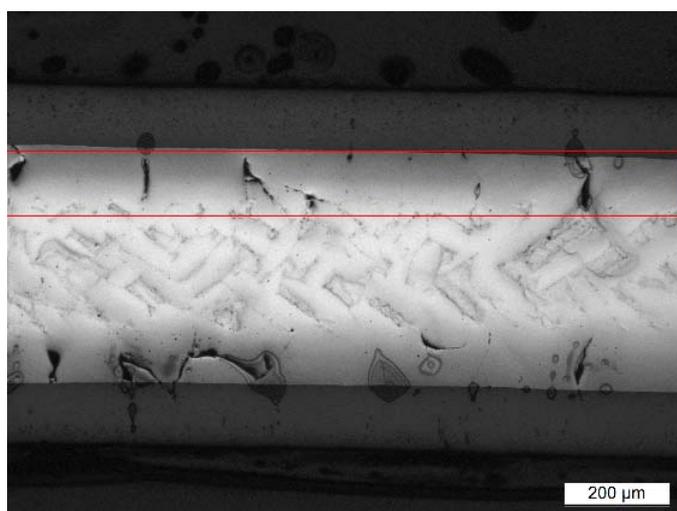


РИС. 97. Внешний вид образца SPP 5 после испытания с воздействием 1200°C /30 мин., включая слой ZrO_2 (верхний), слой α -Zr (в прямоугольнике, очерченном красными линиями) и исходный слой β -Zr (нижний).



РИС. 98. Данные линейного сканирования методом СЭМ-ЭДС по слоям оксида и α -Zr в образце SPP 5 после воздействия при 1200 °C / 30 мин.

Время воздействия для образца SPP 6 составило 5 минут при 1300°C. Остатки пластинчатого образца из Zry-4 с покрытием МАХ-фаза после воздействия показаны на рис. 99. Внутри показанного на рис. 99 прямоугольника, очерченного красными линиями, можно увидеть различные слои. Анализ этого участка методом СЭМ не был возможен, так как образец был крайне хрупким. На рис. 99 а) показана верхняя сторона образца, а на рис. 99 б) — его нижняя сторона. Срез было произведено приблизительно вдоль красной горизонтальной линии, показанной на рис. 99. На рис. 99 а) и рис. 99 б) показаны СЭМ-изображения почти полностью окисленных участков.

СЭМ-изображения середины среза с явно меньшим окислением показаны на рис. 100 а) (полный срез от середины образца SPP 6) и на рис. 100 б) при большем увеличении. Согласно данным литературы, участки с растрескиванием на этих изображениях могут представлять собой α -Zr. На участках, где произошло растрескивание покрытия МАХ-фаза, наблюдалось лишь ограниченное окисление (на рис. 10 а) они обведены красными эллипсами). На рис. 102 приведены результаты композиционного анализа (СЭМ-ЭДС карты распределения) части области, показанной на рис. 101 б). На карте виден примерно такой же профиль композиции в зоне поверхности, как у образца SPP 4 после воздействия при 1100°C.

На рис. 103 представлено увеличенное изображение одной трещины, которая видна в середине рис. 100 а). Повышенные уровни Sn, обнаруженные в трещине и в оксиде, показаны как белые горизонтальные слои. Наличие Sn было проверено с помощью СЭМ-ЭДС карт распределения различных элементов, показанных на рис. 104. На основании фазовой диаграммы Zr-Sn, показанной на рис. 105, температура испытания превышала критическую температуру, указанную на диаграмме Zr-Sn. Об аналогичной микроструктуре также сообщается в литературе [85, 86].

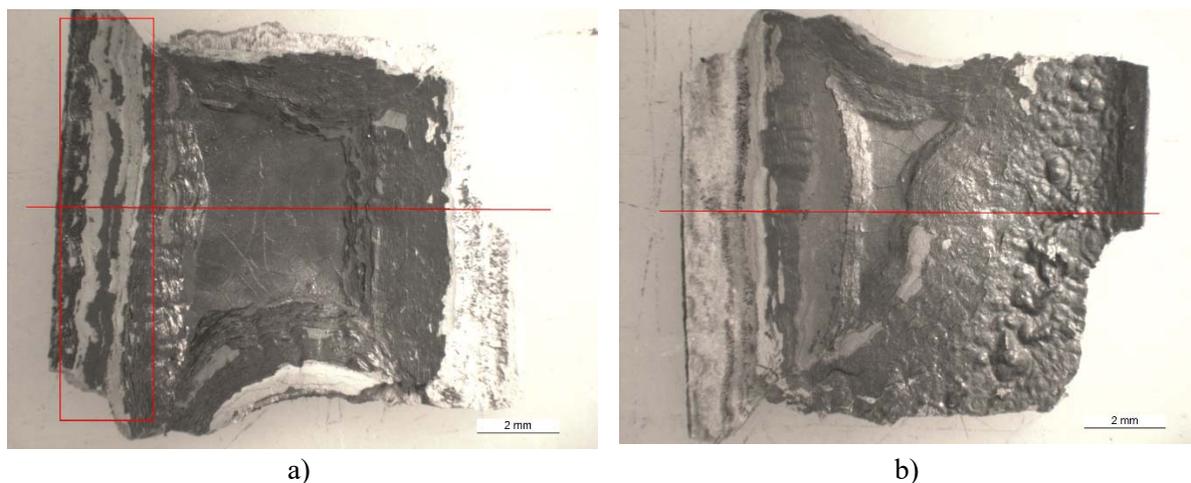
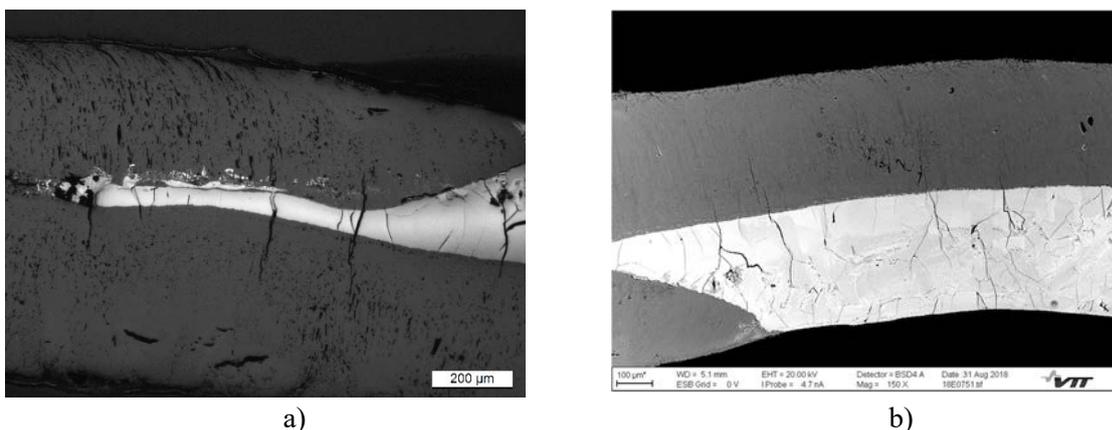


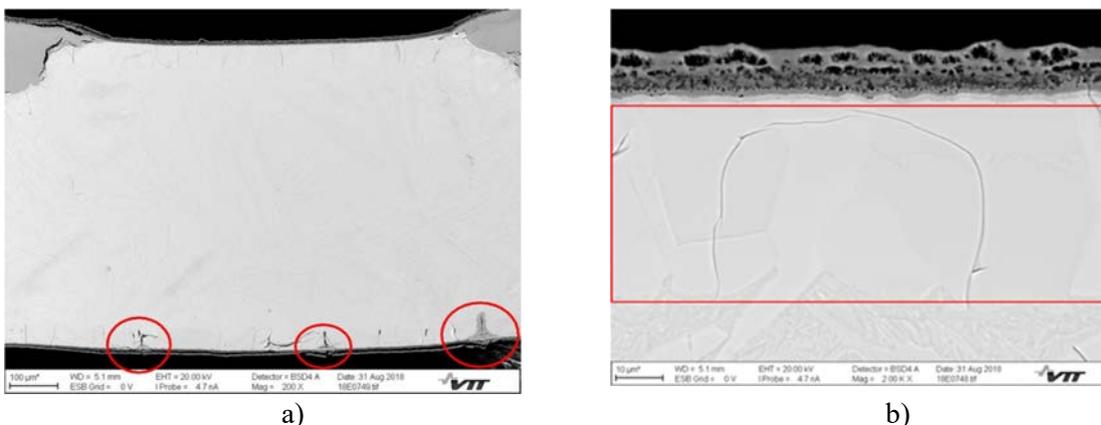
РИС. 99. Остатки образца SPP 6 после воздействия при 1300°C в течение 5 минут. Показаны нижняя сторона образца а) и верхняя сторона образца б). Красная горизонтальная линия обозначает линию среза.



a)

b)

РИС. 100. Срез образца SPP 6: а) вблизи левой стороны на рис. 99 и б) вблизи правой стороны после воздействия при 1300°C в течение 5 минут. Анализ методом СЭМ-ЭДС выявил наличие Sn внутри трещин. Оставшаяся металлическая часть может представлять собой хрупкий α -Zr.



a)

b)

РИС. 101. Образец SPP 6 после воздействия при 1300°C в течение 5 мин.: а) полный срез от середины образца SPP 6, б) подробное изображение верхней части, показанной на левом изображении.

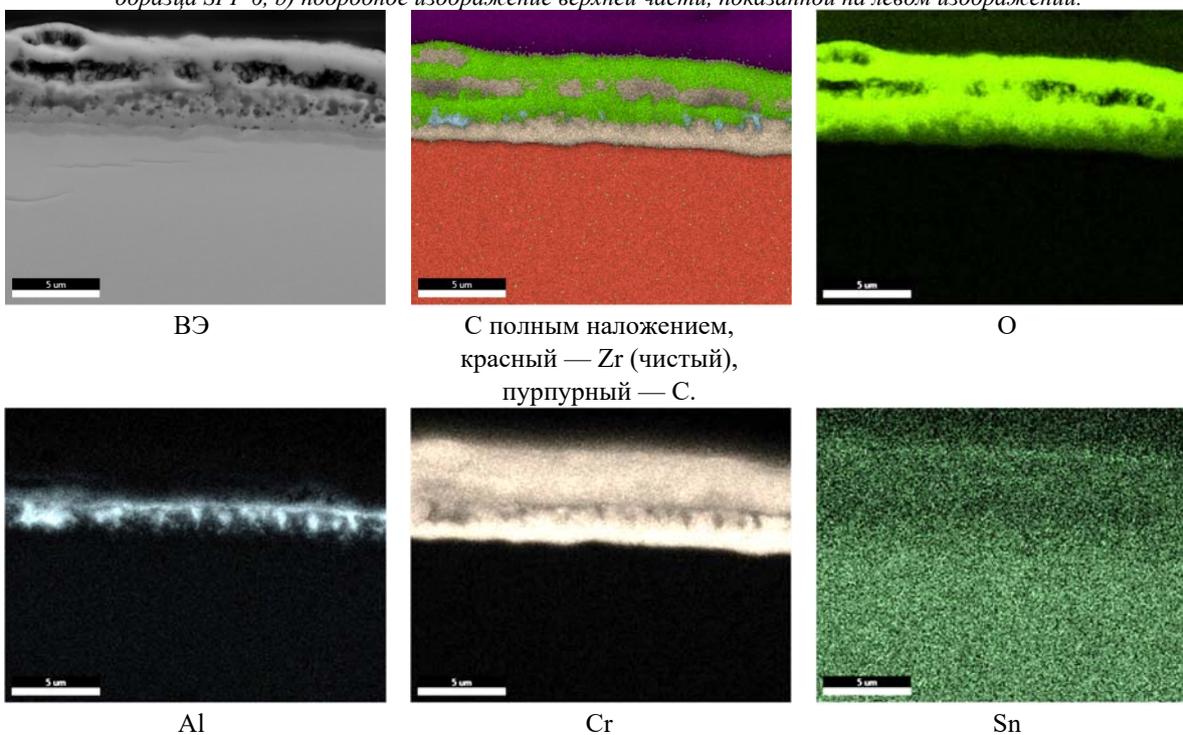


РИС. 102. СЭМ-ЭДС карты распределения различных элементов в образце SPP 6 из Zr₉₀-4 с покрытием MAX-фаза после воздействия при температуре 1300°C в течение 5 минут. Этот анализ был выполнен в поверхностной зоне центральной области образца, где не произошло значительного окисления.

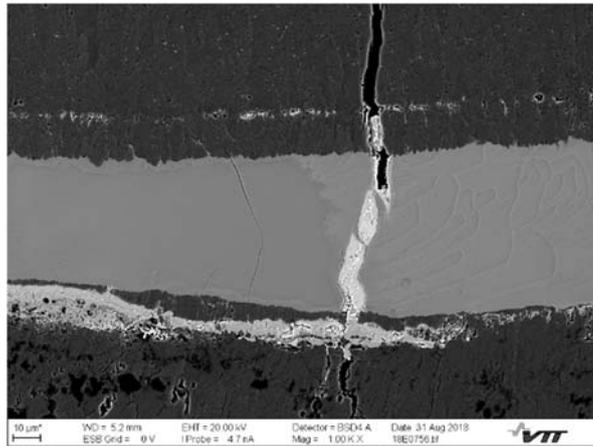


РИС. 103. СЭМ-изображение среза образца SPP 6 после воздействия при 1300°C в течение 5 мин. В середине видна трещина, заполненная материалом, обогащенным Sn. Тонкая трещина слева — это, скорее всего, α -Zr, а сверху и снизу — ZrO_2 .

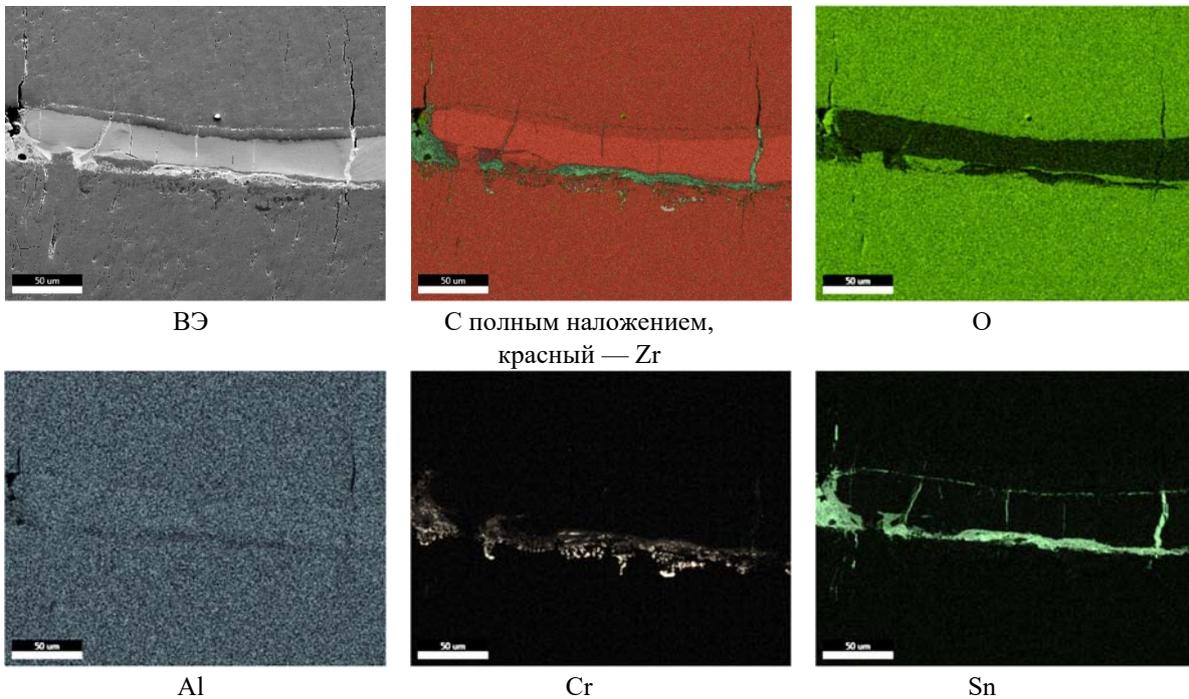


РИС. 104. Образец SPP 6 из Zry-4 с покрытием MAX-фаза после воздействия при температуре 1300°C в течение 5 мин. Анализ области, показанной на рис. 103, где представлены трещины, заполненные Sn.

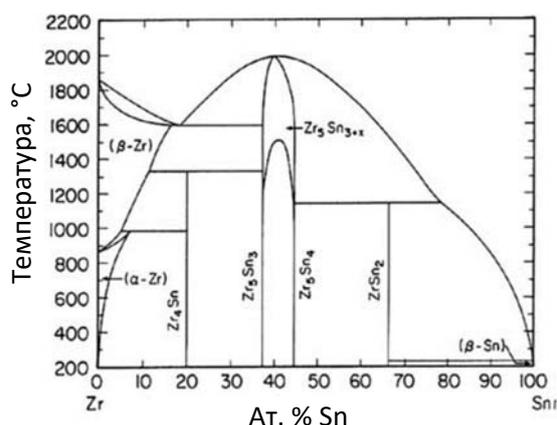


Рис. 105. Фазовая диаграмма бинарной системы Zr–Sn.

4.3.3. Нержавеющая сталь марки AISI 348

Три образца из AISI 348 подвергались воздействию потока пара: образец SPP 1 при 1100°C в течение 60 минут, SPP 2 при 1200°C в течение 30 минут и SPP 3 при 1300°C в течение 5 минут. Перед испытаниями были измерены размеры образцов. Образцы взвешивались до и после испытаний, с тем чтобы рассчитать изменение массы на единицу площади поверхности. Данные по изменению массы представлены в таблице 37. При повышении температуры наблюдалось умеренное увеличение массы вне зависимости от значительного сокращения времени воздействия.

ТАБЛИЦА 37. РАСЧЕТНЫЕ ИЗМЕНЕНИЯ МАССЫ (ΔW) AISI 348 ПОСЛЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ ПАРОМ.

SPP 1 1100°C / 1 ч.	SPP 2 1200°C / 30 мин	SPP 3 1300°C / 5 мин
$\Delta W = 1,62 \%$	$\Delta W = 4,74 \%$	$\Delta W = 5,86 \%$

Изображения в режимах ВЭ и ОРЭ (обратно-рассеянных электронов) показаны на рис. 106. На ВЭ-изображении внешний оксидный слой находится слева, а внутренний оксидный слой — в середине. На ОРЭ-изображении видно, что во время подготовки образца внешний оксидный слой частично отслоился. Этот слой имеет пористость и множественные трещины. Толщина всего оксидного слоя колебалась от 200 до 450 мкм.

На рис. 107 показаны полученные методом СЭМ-ЭДС карты распределения основных элементов, таких как O, Si, Cr, Mn, Fe и Ni, на которых внешний слой оксида находится на левой стороне. Результаты СЭМ-ЭДС анализа выбранных участков (ВУ) показаны на рис. 108. При анализе карты, полученной методом СЭМ-ЭДС, наблюдается типичная структура двойного оксидного слоя, включающая внешний оксидный слой, богатый Fe, и внутренний оксидный слой, богатый Cr, наиболее вероятно представляющий собой Fe-Cr шпинель с определенным количеством Si, Mn и Ni. Кроме того, некоторое количество Mn было обнаружено близко к поверхности исходного образца, см. рис. 108 (выбранный участок 2).

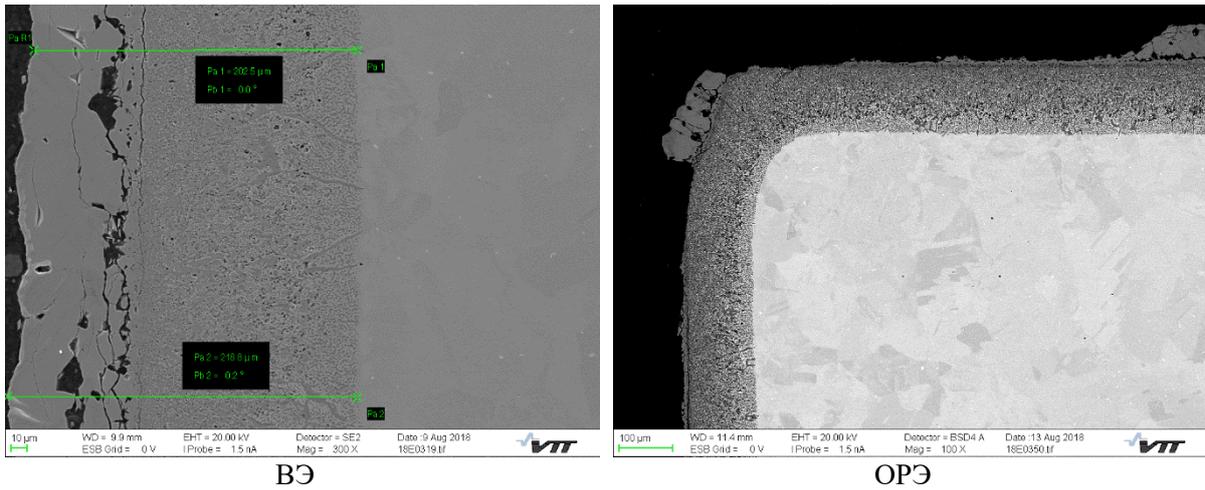


РИС. 106. ВЭ- и ОПЭ-изображения образца SPP 1 после воздействия при 1100°C в течение 60 мин.

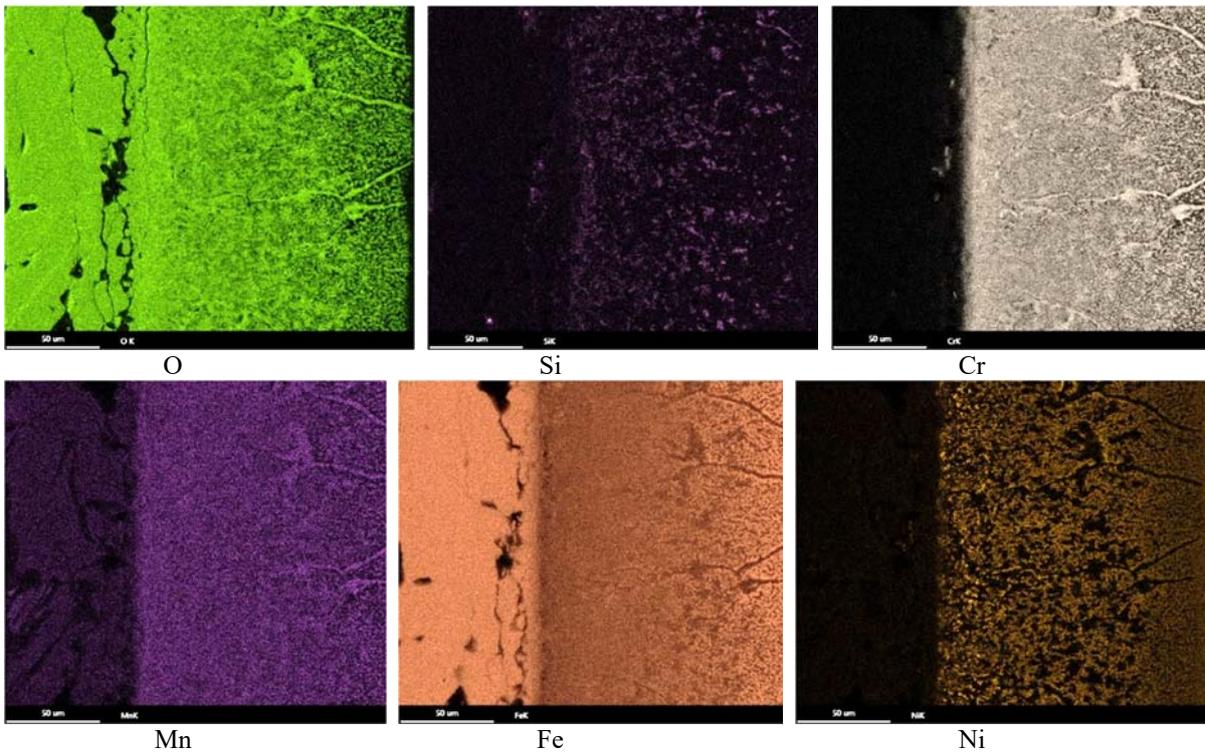
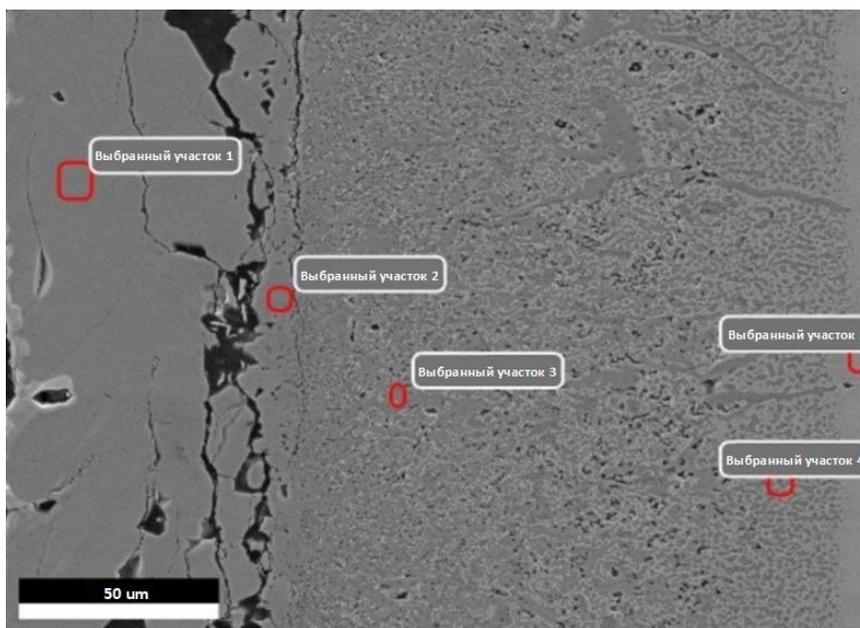


РИС. 107. СЭМ-ЭДС карты образца SPP 1, на которых показано распределение O, Si, Cr, Mn, Fe и Ni после воздействия при 1100°C в течение 60 мин. Внешний слой оксида находится на левой стороне.



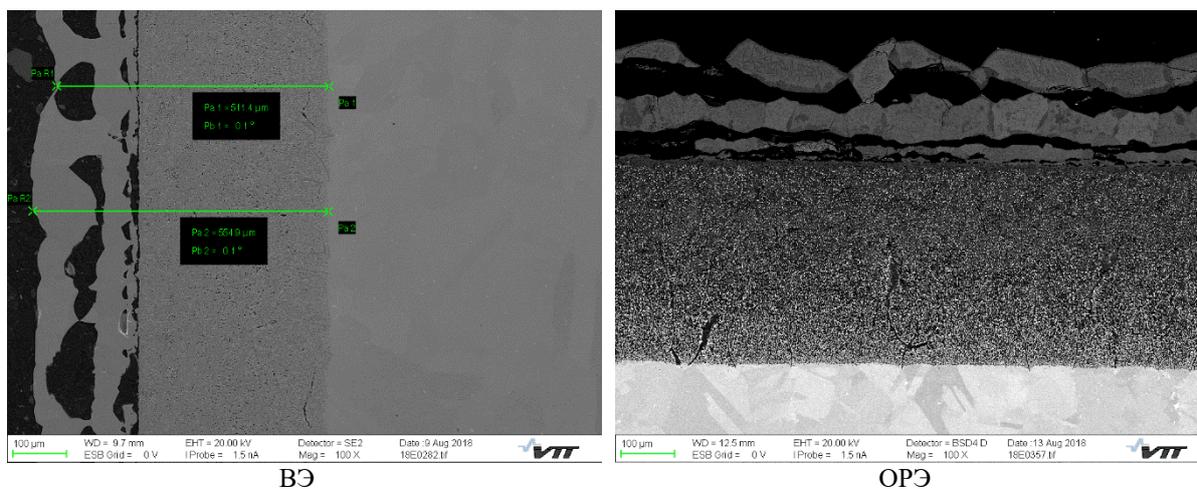
	O K	Si K	Nb K	Mo L	Cr K	Mn K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	26,4	0,1	0,1	0,1	0,2	1,6	71,0	0,5
Выбранный участок 2	24,8	0,2	0,4	0,1	14,0	2,1	56,8	1,5
Выбранный участок 3	23,3	1,6	0,9	0,1	28,0	1,2	40,7	4,1
Выбранный участок 4	11,7	0,6	0,4	0,1	18,2	1,2	60,4	7,3
Выбранный участок 5	0,8	0,5	0,3	0,1	19,0	1,6	69,1	8,7

РИС. 108. СЭМ-ЭДС анализ химического состава ВУ образца SPP 1 (масс.%).

Для количественного анализа использовались линии K- и L-серий рентгеновского излучения.

На рис. 109 показаны ВЭ- и ОРЭ-изображения образца SPP 2 после воздействия при 1200°C в течение 30 мин. На ВЭ-изображении внешний оксидный слой находится с левой стороны, внутренний оксидный слой — рядом с внешним оксидным слоем в середине, а основной объем находится с правой стороны. На ОРЭ-изображении внешний слой оксида находится сверху. Внешний оксидный слой пористый и частично отслоился после подготовки образца, а на внутреннем оксидном слое видны трещины. Толщина всего оксидного слоя колебалась от 500 до 650 мкм.

На рис. 110 показаны СЭМ-ЭДС карты распределения O, Si, Cr, Mn, Fe и Ni, на которых наружный оксидный слой находится в нижней части. Результаты соответствующего СЭМ-ЭДС анализа ВУ показаны на рис. 111.



ВЭ

ОРЭ

РИС. 109. Образец SPP 2 после воздействия при 1200°C в течение 30 мин.

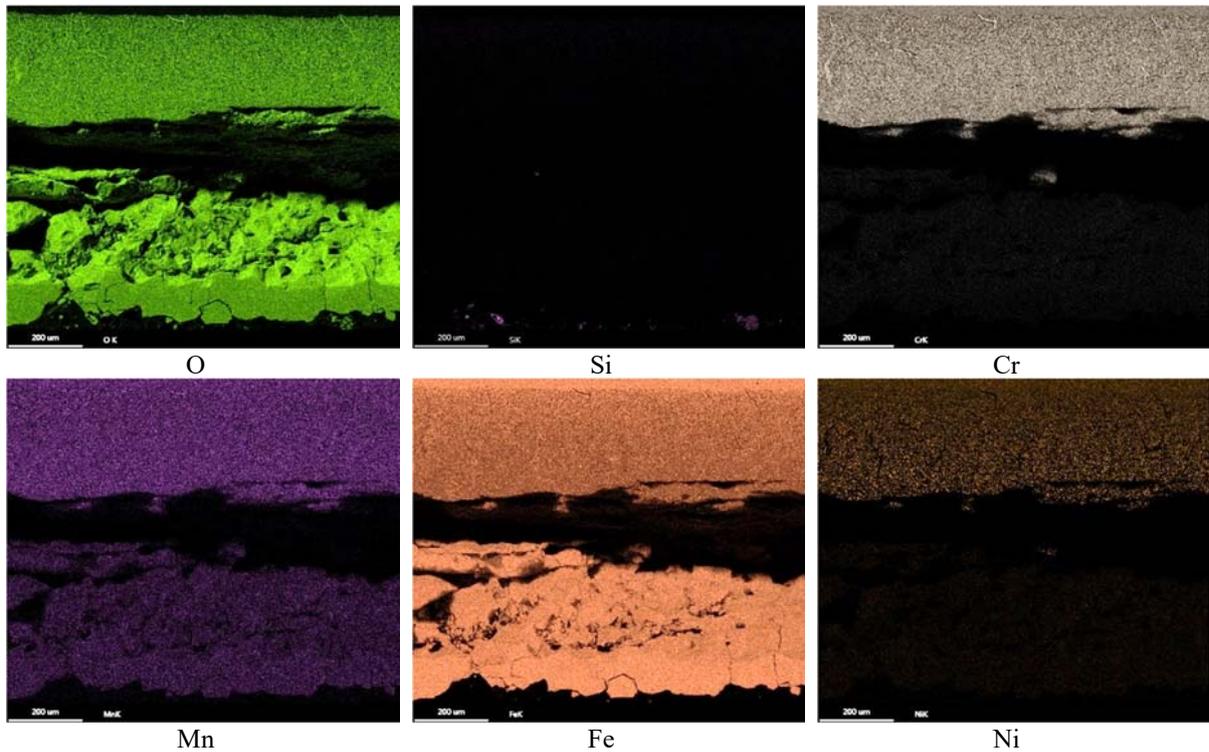
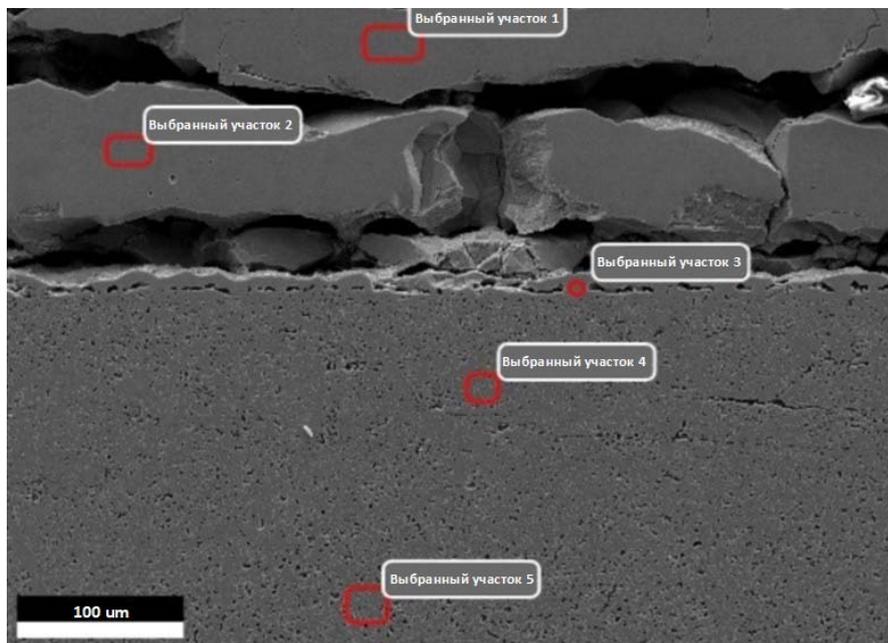


РИС. 110. СЭМ-ЭДС карты образца SPP 2, на которых показано распределение O, Si, Cr, Mn, Fe и Ni. Внешний оксидный слой находится внизу, внутренний оксидный слой в верхней части карт, а сверху видна узкая зона основного объема сплава.



	O K	Si K	Nb K	Mo L	Cr K	Mn K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	23,2	—	—	—	0,2	2,2	73,9	0,6
Выбранный участок 2	23,2	0,1	0,2	0,1	0,3	1,9	74,0	0,2
Выбранный участок 3	23,9	0,7	0,9	0,1	7,0	2,0	64,5	0,7
Выбранный участок 4	21,3	0,2	0,5	0,1	24,9	1,0	44,5	7,4
Выбранный участок 5	18,9	0,5	0,6	0,1	26,9	0,9	44,7	7,3

РИС. 111. СЭМ-ЭРС анализ химического состава ВУ образца SPP 2 (масс.%). При количественном анализе использовались K и L линии рентгеновского излучения.

На рис. 112 показаны ВЭ- и ОРЭ-изображения образца SPP 3 после воздействия при 1300°C в течение 5 мин. На ВЭ-изображении внешний оксидный слой находится сверху, внутренний оксидный слой – под внешним оксидным слоем, а основной объем находится внизу. На ОРЭ-изображении видно, что внешний оксидный слой пористый и частично отслоился в результате подготовки образца. Внутренний оксидный слой имеет большие трещины. Толщина всего оксидного слоя колебалась от 520 до 1050 мкм.

СЭМ-ЭДС карты распределения O, Si, Cr, Mn, Fe и Ni, показаны на рис. 113, причем внешний слой оксида находится на левой стороне. Результаты СЭМ-ЭДС анализа ВУ показаны на рис. 114.

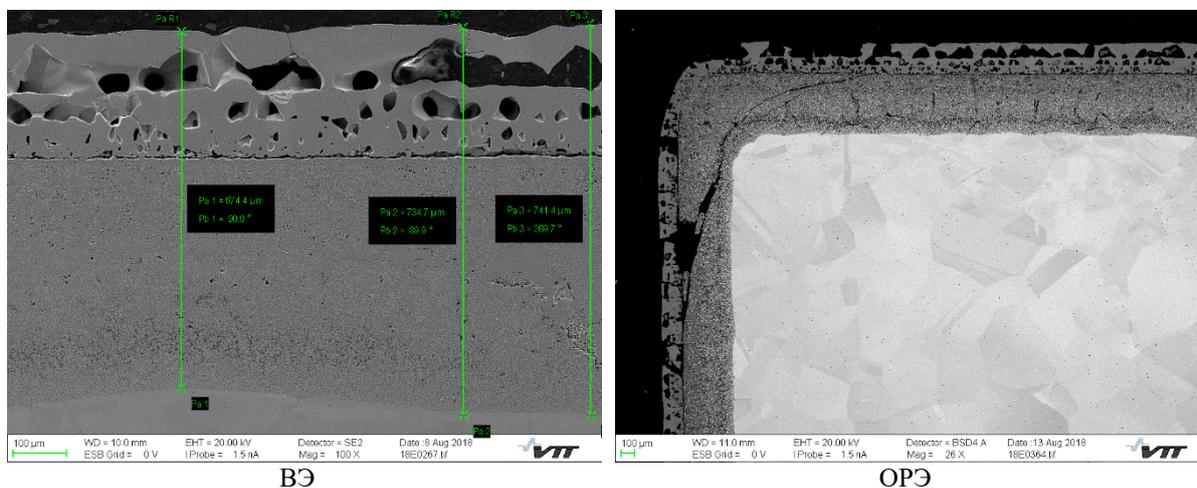


РИС. 112. Образец SPP 3 после воздействия при 1300°C в течение 5 мин.

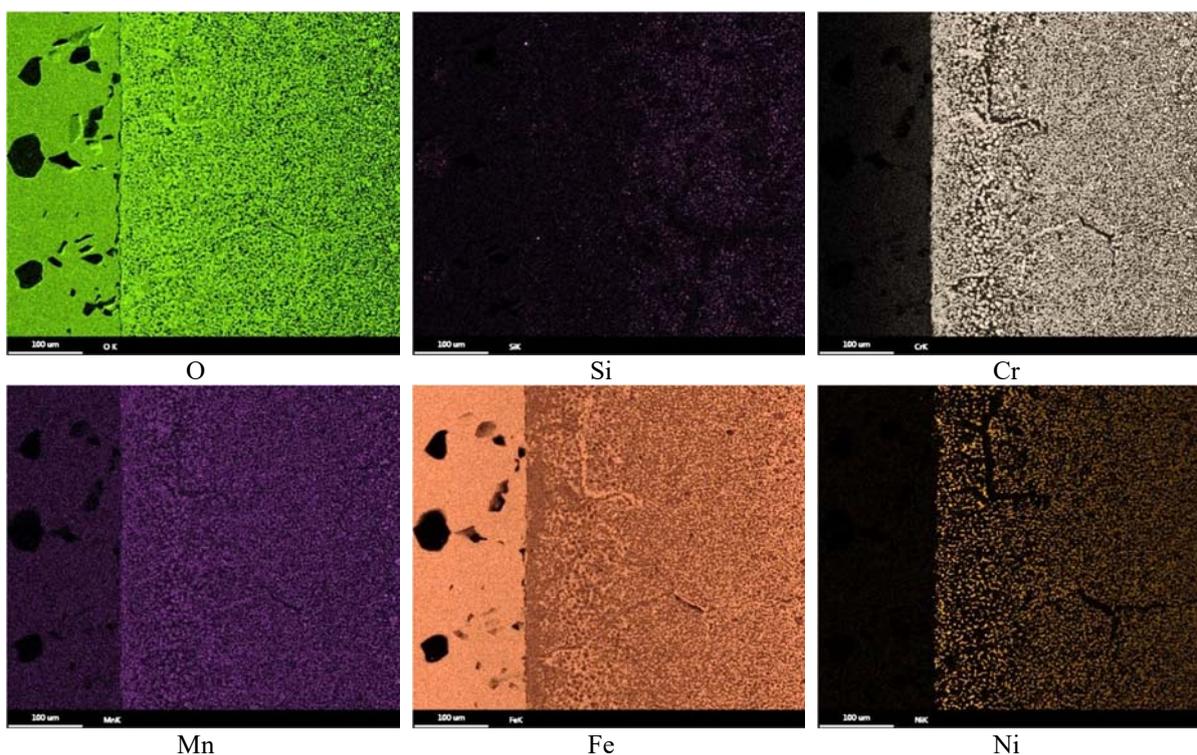
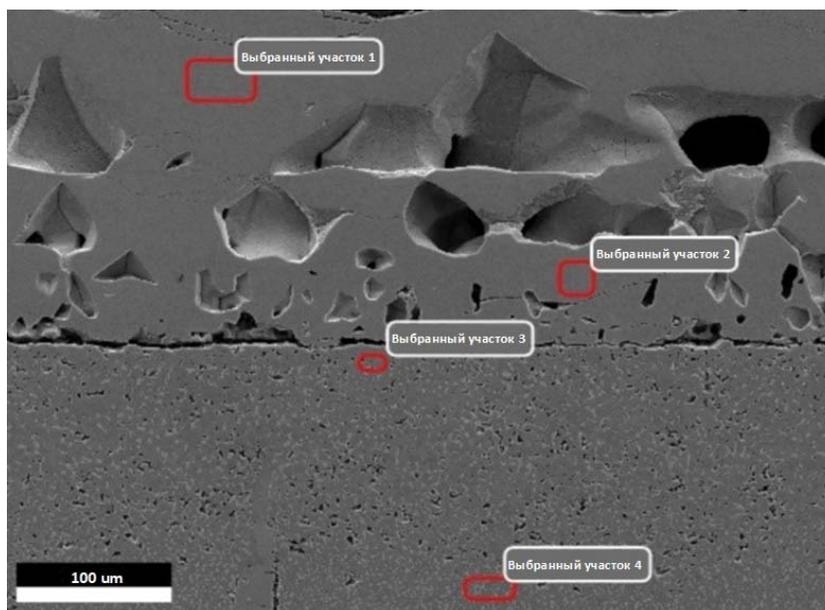


РИС. 113. СЭМ-ЭДС карты образца SPP 3 после воздействия при 1300°C в течение 5 мин, на которых показано распределение O, Si, Cr, Mn, Fe и Ni. Внешний оксидный слой находится слева, внутренний оксидный слой — в середине, а основной объем — справа за рамками изображений.



	O K	Si K	Nb K	Mo L	Cr K	Mn K	Fe K	Ni K
Выбранный участок 1	23,5	0,1	0,2	0,1	0,2	1,8	74,0	0,2
Выбранный участок 2	23,7	0,2	0,3	0,1	2,2	1,6	71,7	0,2
Выбранный участок 3	22,8	0,4	0,7	0,1	19,9	1,5	49,3	5,4
Выбранный участок 4	16,3	0,3	0,5	0,1	21,1	0,9	45,0	15,8

РИС. 114. СЭМ-ЭРС анализ химического состава ВУ образца SPP 3 (масс.%). При количественном анализе использовались K и L линии рентгеновского излучения.

Общей особенностью образцов была двухслойная структура оксида. Внешний слой содержал в основном Fe с некоторым количеством Mn, а внутренний слой – Fe, Mn, Cr и Ni. По мере роста температуры испытания содержание Fe во внешнем оксидном слое немного увеличивалось. При 1100°C содержание Fe составляет 71,0 масс.%, а при 1200 и 1300°C – около 74 масс.%. Толщина всего оксидного слоя также увеличилась при повышении температуры испытания. При 1100°C средняя толщина, измеренная по СЭМ срезов, варьировалась от 200 до 450 мкм, а при 1300°C – от 520 до 1050 мкм.

При самой высокой температуре Cr диффундировал от внутреннего слоя к внешнему, как показано на СЭМ-ЭДС картах на рис. 113. Содержание Cr и Fe на ВУ1 (Cr 0,2 масс.% и Fe 74,0 масс.%) и ВУ2 (Cr 2,2 масс.% и Fe 71,7 масс.%) показано на рис. 114.

4.4. РЕЗУЛЬТАТЫ: ТИК

В ТИК были проведены испытания на высокотемпературное окисление в атмосфере водяного пара четырех имевшихся материалов-кандидатов на использование в оболочке ATF в трех заранее определенных условиях. Более подробную информацию о результатах высокотемпературных испытаний, проведенных в ТИК в рамках ПКИ АКТОФ, можно найти в отдельном докладе ТИК «Round Robin High temperature Oxidation Tests at KIT» («Круговые испытания на высокотемпературное окисление в ТИК») (см. приложение).

4.4.1. Zry-2 с PVD Cr покрытием

На рис. 115 представлены макроскопические изображения внешнего вида образцов из Zry-2 с хромовым покрытием после испытаний на окисление. Изменение цвета, вызванное окислением, наблюдалось при всех температурах испытаний. При 1100°C локализованное отслаивание Cr покрытия наблюдалось только на той стороне, которая соприкасается с держателем образца. При 1200 и 1300°C сцепление Cr покрытий улучшилось по сравнению с окислением при 1100°C, что, вероятно, было следствием существенного взаимодействия между покрытием и подложкой при более высокой температуре.

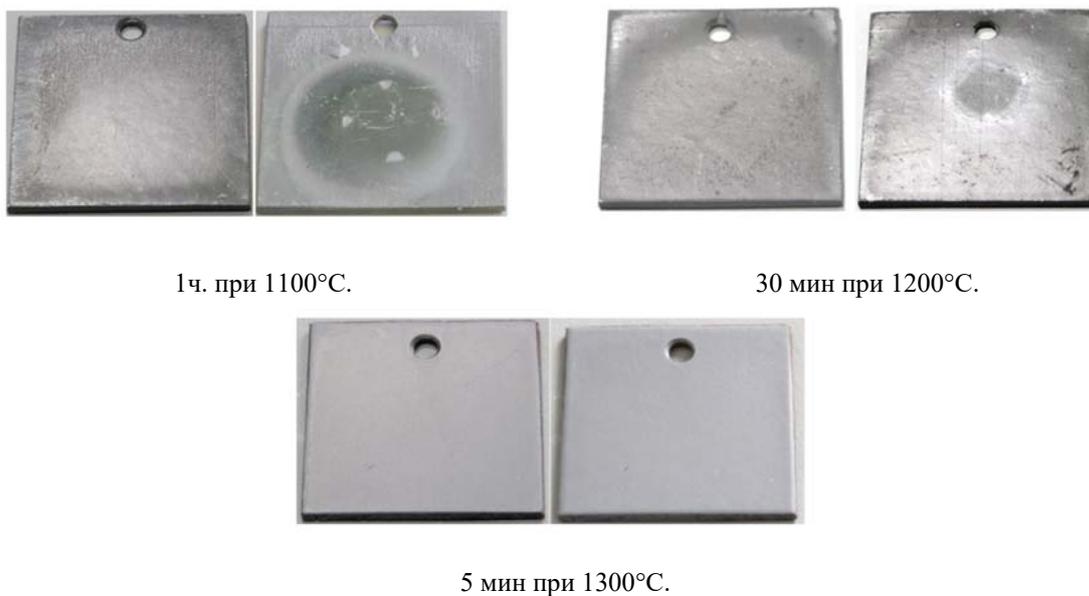


РИС. 115. Внешний вид образцов из Zr-2 с Cr покрытием после испытаний на окисление.

Как показано на рис. 116, значения привеса массы образца и выхода водорода во время испытаний на окисление образцов из Zr-2 с хромовым покрытием были низкими. Соотношение между привесом массы образца и массой высвобожденного молекулярного водорода составляет 8,04 (молярная масса атомного кислорода, деленная на молярную массу молекулярного водорода), если происходят только процессы, приводящие к привесу массы, и не происходят процессы, приводящие к убыли массы. Поэтому масса водорода умножается на 8. При 1100°C после испытания был измерен меньший привес массы, чем ожидалось в результате выхода водорода. Убыль массы образца была вызвана локальным отслаиванием покрытия, упомянутым ранее. Разница между массой водорода и привесом массы образца мала для двух других температур испытания и может быть объяснена неопределенностью при измерении водорода.

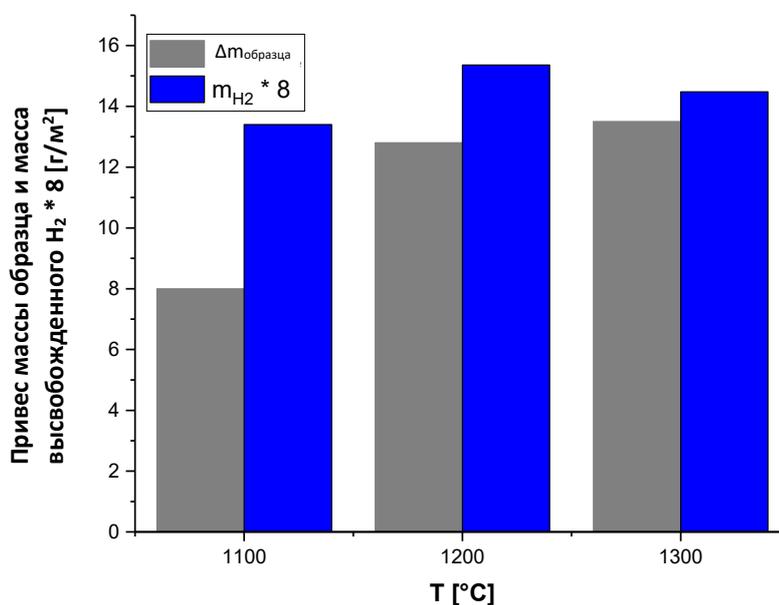


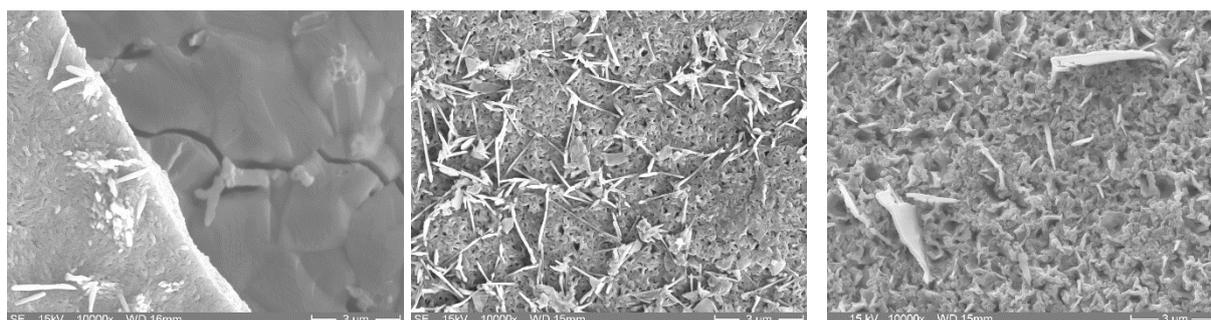
РИС. 116. Сравнение привеса массы образца и массы высвобожденного водорода (умноженной на 8) для образцов из Zr-2 с хромовым покрытием.

Оксид, образовавшийся на поверхности с покрытием при 1100°C, является плотным и однородным, за исключением некоторой степени отслаивания и растрескивания. Кроме того, как показано на рис. 117, в поверхностном слое присутствовали игольчатые зерна. Окисление Cr покрытия привело к образованию на оставшемся слое Cr толщиной 22 мкм окалины из Cr₂O₃ толщиной 5,5 мкм. До окисления фактическая

толщина Cr покрытия была близка к 25 мкм. Находящаяся под ним подложка из Zry-2 не окислилась, за исключением отдельных участков.

На поверхности после окисления при 1200°C существовало большое количество игольчатых зерен (усов), а под ним — гладкий слой. ЭРС-анализ показал, что зерна обоих слоев состоят из Cr₂O₃. Рост таких игольчатых зерен обычно происходит вследствие быстрой диффузии ионов хрома наружу через границы зерен или дефекты решетки [9]. Необходимо отметить, что в гладком слое присутствуют весьма мелкие поры. Слой окалины Cr₂O₃, образовавшийся после 30-минутного окисления при этой температуре, имеет толщину около 7,3 мкм. Окисления подложки из Zry-2 не было обнаружено, но впоследствии наблюдался слой взаимной диффузии.

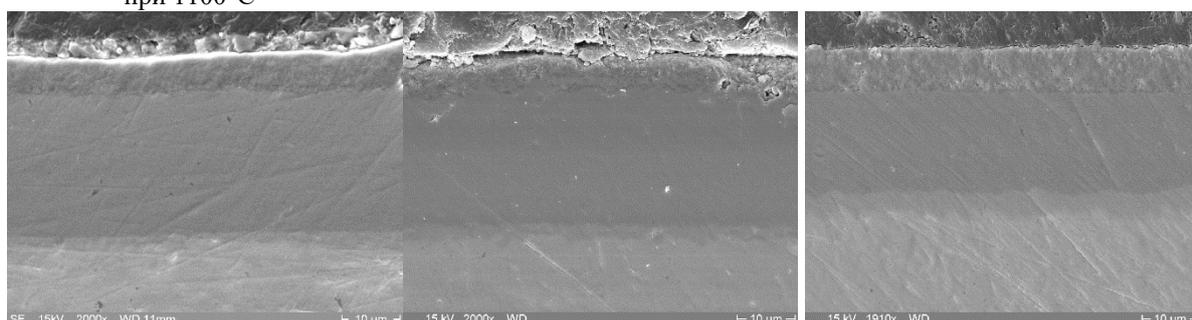
Скорость окисления Cr покрытия была значительно выше при 1300°C в течение 5 минут, и толщина слоя Cr₂O₃ достигла 8 мкм. Более высокая температура окисления способствует внутренней диффузии Cr из покрытий в подложку.



Поверхность после 1 часа
при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C



Срез после 1 часа при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C

Рис. 117. СЭМ-изображения поверхностей и срезов образцов Zry-2 с хромовым покрытием.

4.4.2. Zry-4 с PVD покрытием МАХ-фаза

На рис. 118 показан макроскопический внешний вид образцов Zry-4 с покрытием МАХ-фаза после испытаний. Было обнаружено значительное расслоение покрытия и оказалось, что оно происходит от краев образца. Наилучшая адгезия наблюдалась при испытании при температуре 1300°C. На рис. 119 представлены в графической форме значения привеса массы образца и массы выделившегося водорода. Можно видеть, что при увеличении привеса массы образца и высвобождения водорода усиливается склонность к расслоению. Масса выделившегося водорода, умноженная на 8, всегда немного превышает привес массы образца, что можно отнести на счет образования летучих оксидов углерода, немного снижающего массу образца при окислении. При любых условиях привес массы и выделение водорода в 7–20 раз выше, чем в случае образца из Zry-2 с хромовым покрытием.

На рис. 120 показаны СЭМ-изображения типичной морфологии поверхности и среза после испытаний на окисление. Оставшийся оксидный слой имеет компактную структуру. Окисление кромок без покрытия привело к образованию трещин параллельно поверхности подложки/покрытия, а также к

расслоению и отслаиванию покрытий. На других участках покрытие сохраняет адгезию и защитные свойства, а пленка окалины имеет компактную структуру.



1 ч. при 1100°C.

30 мин при 1200°C

5 мин при 1300°C.

РИС. 118. Внешний вид образцов из Zry-4 с Cr₂AlC покрытием MAX-фаза после испытаний на окисление.

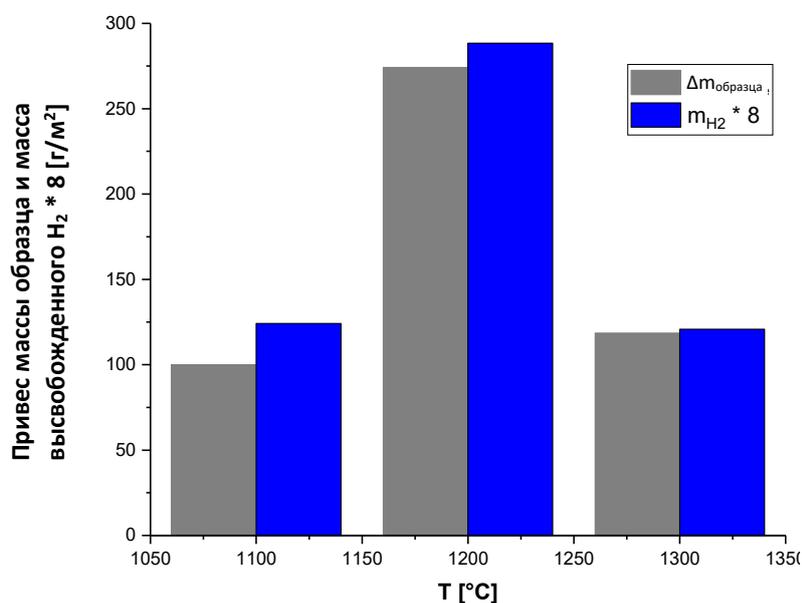
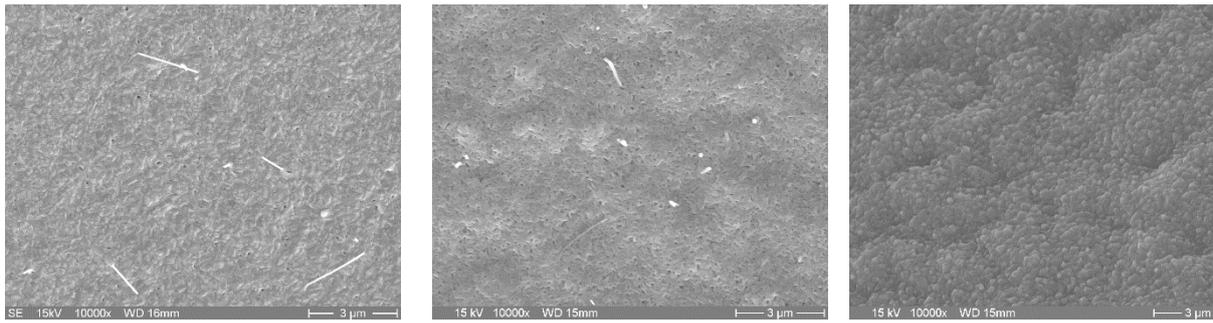


РИС. 119. Сравнение привеса массы образца и массы высвобожденного водорода (умноженной на 8) для образцов из Zry-2 с хромовым покрытием.

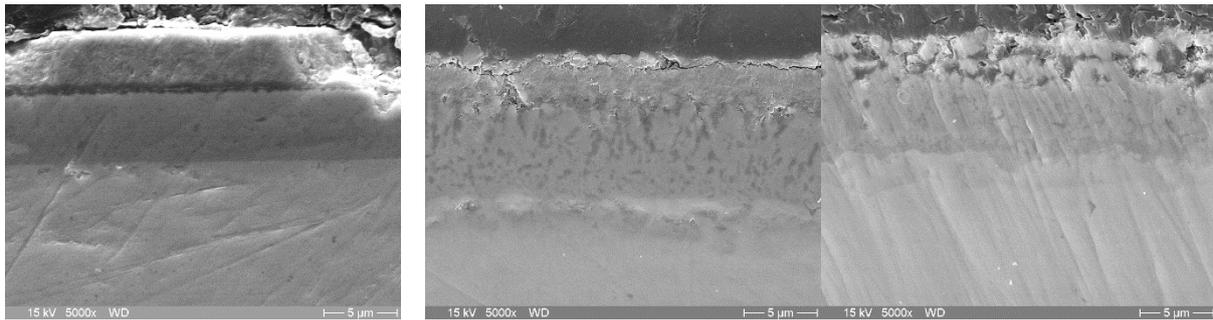
В местах расслоения покрытий наблюдалось значительное окисление подложки. В отличие от этого, если покрытие не было повреждено, окисления подложки не происходило. Окисление Cr₂AlC приводило к образованию под поверхностью Cr₂O₃ слоя оксида алюминия, который препятствует быстрому расходованию покрытий.



Поверхность после 1 часа при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C



Срез после 1 часа при 1100°C

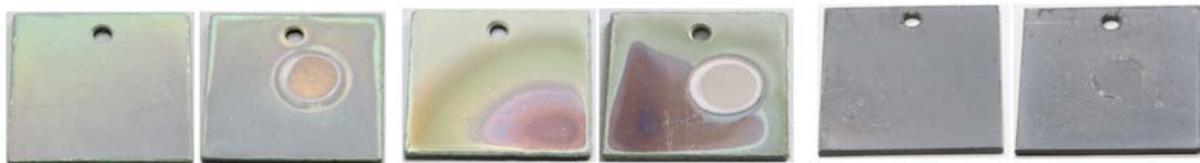
30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C

РИС. 120. СЭМ-изображения поверхностей и срезов образцов из Zry-2 с хромовым покрытием.

4.4.3. Zry-2 с PVD ZrSi-Cr покрытием

ZrSi-Cr покрытия имели блестящую окраску без какого-либо отслаивания. Изменение цвета образцов, подвергшихся воздействию температуры 1100 и 1200 °С, было вызвано контактом поверхности с держателем образца.



1ч. при 1100°C.

30 мин при 1200°C

5 мин при 1300°C.

РИС. 121. Внешний вид образцов из Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием после испытаний на окисление.

Изменение массы показано на рис. 122, причем наблюдалась значительная убыль массы. Покрытия ZrSi-Cr подверглись полному окислению при всех исследованных температурах, но отслаивания не происходило. Однако окисленные покрытия не могут служить диффузионным барьером для пара. Под покрытием вырос ровный слой ZrO_2 толщиной 73 мкм. Пленка окалины, образовавшаяся на образце из Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием, в основном состоит из моноклинного ZrO_2 , вероятно, с некоторым включением Cr_2O_3 и SiO_2 с низкой степенью кристалличности (или аморфной структурой). Однако после окисления при 1100°C и 1200°C поверхность была покрыта изолированными круглыми зёрнами. При 1300°C зёрна оксида уже не округлые, а имеют более угловатую форму. Наблюдалась пустоты и поры.

Как показано на рис. 123, на поверхности вырос слой почти чистого ZrO_2 . Под слоем ZrO_2 и $Zr(O)$ наблюдался слой, обогащенный Si. Отсутствие элементов Si и Cr в пленке окалины, вероятно, связано с улетучиванием и диффузией этих двух элементов внутрь.

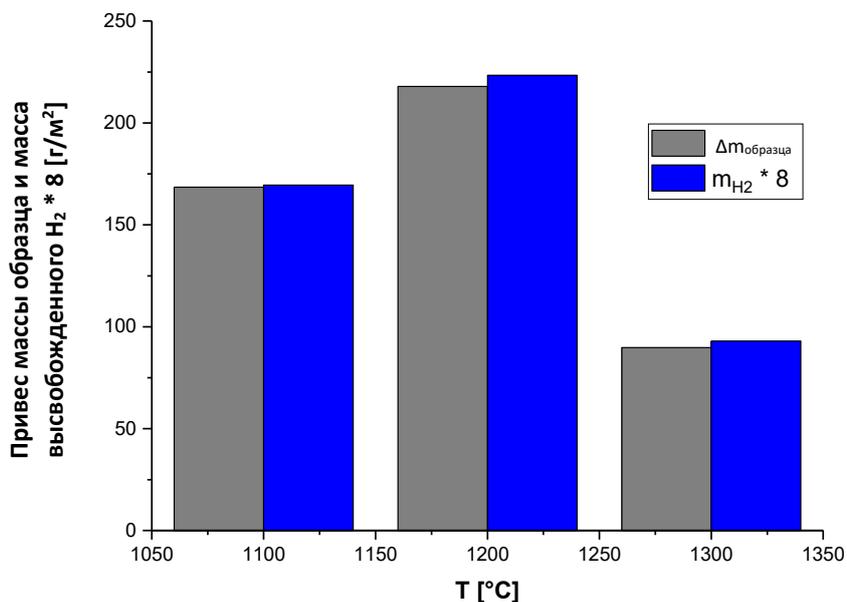
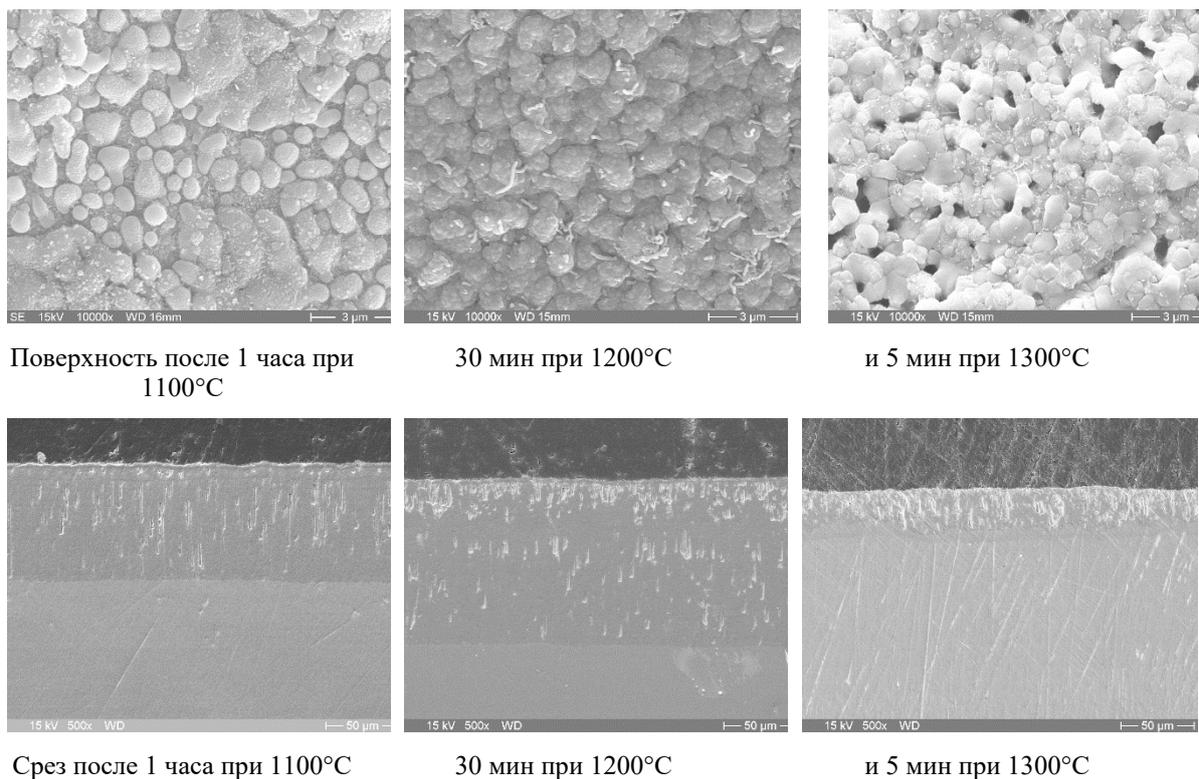


РИС. 122. Сравнение привеса массы образца и массы выделившегося водорода (умноженной на 8) для образцов из Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием.



Поверхность после 1 часа при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C

Срез после 1 часа при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C

РИС. 123. SEM-изображения поверхностей и срезов образцов из Zry-2 с ZrSi-Cr покрытием.

4.4.4. Нержавеющая сталь марки AISI 348

Как показано на рис. 124, пленка окалины, образовавшаяся на поверхности образцов из AISI 348 при 1100°C, обладала низкой адгезией со значительным отслаиванием. Участки отслоившегося оксидного слоя

показывали, что пленка окалины была заметно толстой. При обеих более высоких температурах не было обнаружено сильного отслаивания оксида.



1ч. при 1100°C.

30 мин при 1200°C

5 мин при 1300°C.

РИС. 124. Внешний вид образцов из AISI 348 после испытаний на окисление.

Как показано на рис. 125, окисление стали марки AISI 348 привело к росту пленки окалины с двумя подстилающими слоями. Внешний слой представлял собой слой Fe_3O_4 с низкой адгезией, а внутренний слой был относительно плотным слоем $FeCr_2O_4$.

Привес массы образца был высоким по сравнению с другими исследованными системами материалов. Сравнение привеса массы образца и массы выделившегося водорода позволяет предположить, что произошло отслаивание оксида.

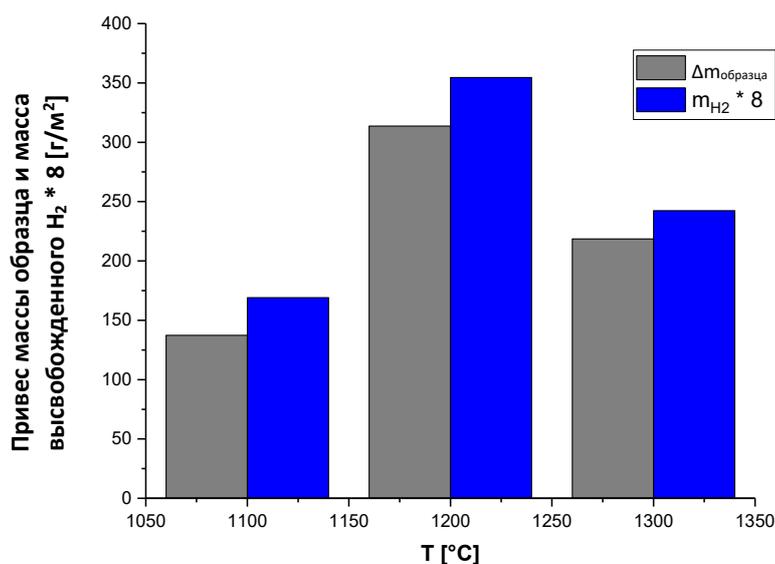
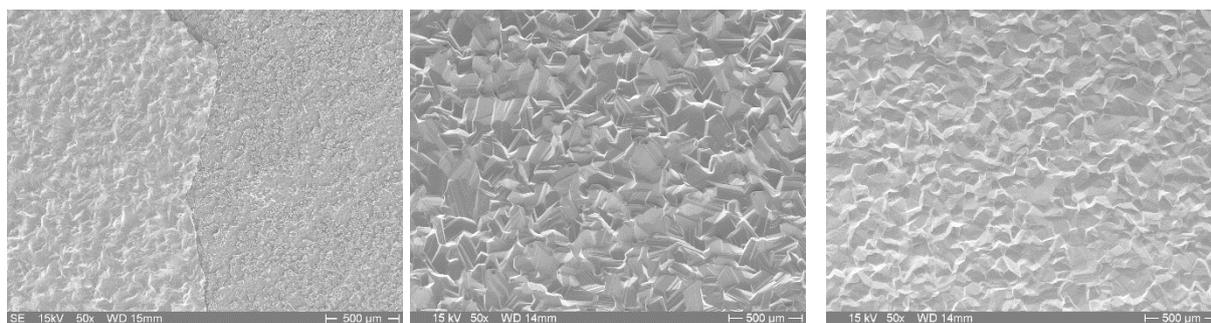


РИС. 125. Сравнение привеса массы образца и массы выделившегося водорода (умноженной на 8) для образцов из AISI 348.

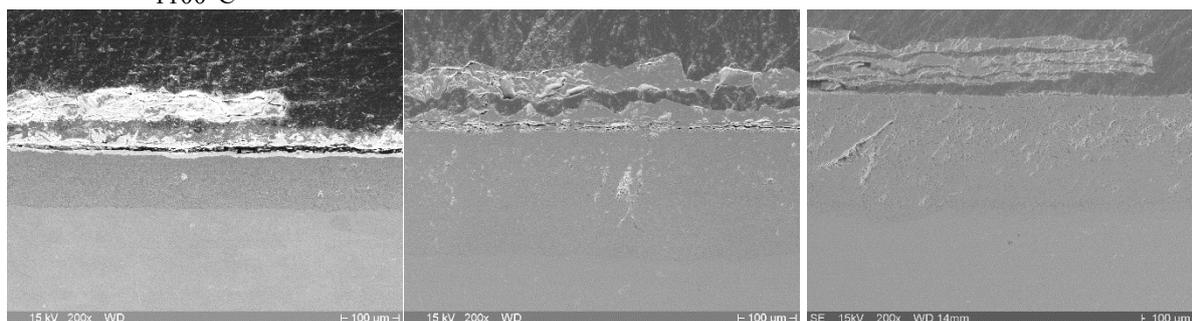
Поверхностный оксид приобрел извилистую морфологию с угловатыми зёрнами на аустенитной стали AISI 348 при 1100°C и 1300°C. Как показано на рис. 126, при 1300°C окисление стали AISI 348 привело к образованию двухслойной толстой пленки окалины. Однако внешний слой превратился в Fe_2O_3 , а не в Fe_3O_4 , как наблюдалось при более низких температурах.



Поверхность после 1 часа при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C



Срез после 1 часа при 1100°C

30 мин при 1200°C

и 5 мин при 1300°C

РИС. 126. SEM-изображения поверхностей и срезов образцов из AISI 348.

4.5. РЕЗУЛЬТАТЫ: МТА ЕК

МТА ЕК присоединилась к работам по КИ в 2018 году в качестве сотрудничающей организации и получила от ЧТУ/UJR для испытаний на окисление при 1100 и 1200°C показанные на рис. 127 образцы Zr1%Nb с PVD Cr покрытием. Помимо высокотемпературного окисления, были проведены испытания на сжатие кольца.



РИС. 127. Образцы с Cr покрытием (вверху) и эталонные образцы из Zr (внизу).

4.5.1. Окисление в атмосфере водяного пара: Zr1%Nb с PVD Cr покрытием

Эксперименты по окислению в атмосфере водяного пара были успешно завершены, причем условия и результаты испытаний представлены в таблице 38. Толщина оксида хрома была рассчитана на основе привеса массы, измеренного во время испытания, и площади поверхности.

$$L = \frac{\Delta m \cdot 2M_{Cr} \cdot 10000}{\rho_{Cr} \cdot A \cdot 1,5M_{O_2}} \quad (49)$$

где:

L — толщина слоя оксида хрома (мкм);

Δm привес массы образца (г);
 M_{Cr} молярная масса хрома = 52,0 (г/моль);
 ρ_{Cr} плотность хрома = 7,15 (г/см³);
 A площадь поверхности образца (см²);
 M_{O_2} молярная масса кислорода = 32,0 (г/моль).

ТАБЛИЦА 38. РЕЗУЛЬТАТЫ И УСЛОВИЯ ИСПЫТАНИЯ НА ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ОКИСЛЕНИЕ

Образец	Тип	Атм.	Темп. окисл. (°C)	Время окисл. (с)	Начальная масса (г)	Привес массы (г)	A (см ²)	$\Delta m/A$ (г/м ²)	L (мм)	D (мм)	L (мкм)
IAEA-01	С Cr покр.	воздух	1200	3600	10,31819	0,07356	18,29	40,2	57,0	9,17	12,2
IAEA-02	Zr этал.	пар	1100	3600	11,02454	0,35719	18,64	191,6	58,9	9,12	—
IAEA-03	С Cr покр.	пар	1100	3600	9,96257	0,01582	17,96	8,8	56,0	9,17	2,7
IAEA-04	С Cr покр.	пар	1100	10800	10,26797	0,02497	18,25	13,7	57,0	9,15	4,1
IAEA-05	Zr этал.	пар	1200	1800	10,98722	0,43748	18,75	233,3	58,9	9,14	—
IAEA-06	С Cr покр.	пар	1200	1800	10,34523	0,02312	18,29	12,6	57,0	9,17	3,8
IAEA-07	С Cr покр.	пар	1200	2700	9,83425	0,02837	17,88	15,9	55,8	9,15	4,8
IAEA-08	С Cr покр.	пар	1200	3600	10,37083	0,03443	18,33	18,8	57,1	9,18	5,7

Cr покрытие после испытаний на окисление сохранилось. Если взять в качестве примера образец IAEA-01, то толщина оставшегося слоя Cr составляла около 19 мкм с уменьшением толщины приблизительно на 5 мкм.

Привес массы образцов с Cr покрытием был очень низким по сравнению с эталонными образцами из Zr, окисленными при аналогичных условиях. Привес массы образцов из Zr составил 0,3–0,4 г, а образцов с Cr покрытием — всего 0,01–0,04 г в атмосфере водяного пара.

Образцы были сфотографированы до и после испытаний на окисление. Фотографии образцов при получении (эталонного и с Cr покрытием) перед окислением показаны на рис. 128.



РИС. 128. Эталонный образец из Zr (слева) и образец из Zr с покрытием (справа) по получении и до окисления.

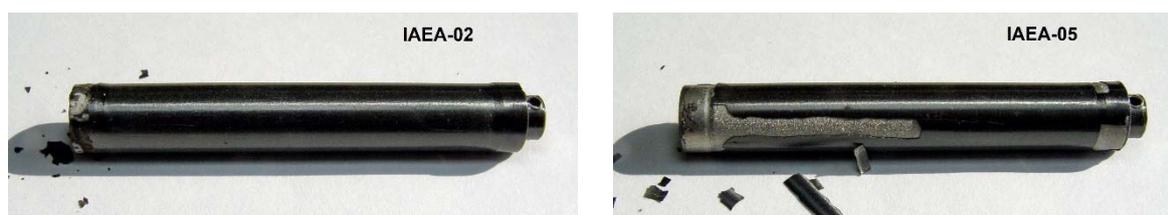


РИС. 129. Эталонные образцы из Zr после окисления в атмосфере водяного пара при 1100°C (слева) и 1200°C (справа).

На рис. 129 показаны эталонные образцы после окисления в атмосфере водяного пара при температуре 1100 и 1200 °С. В непосредственной близости от сварных швов наблюдается отслаивание оксидов, произошедшее, возможно, во время охлаждения в воде. На рис. 130 показаны образцы с Cr покрытием после высокотемпературного окисления в атмосфере водяного пара, на поверхности которых вырос компактный темный оксидный слой.

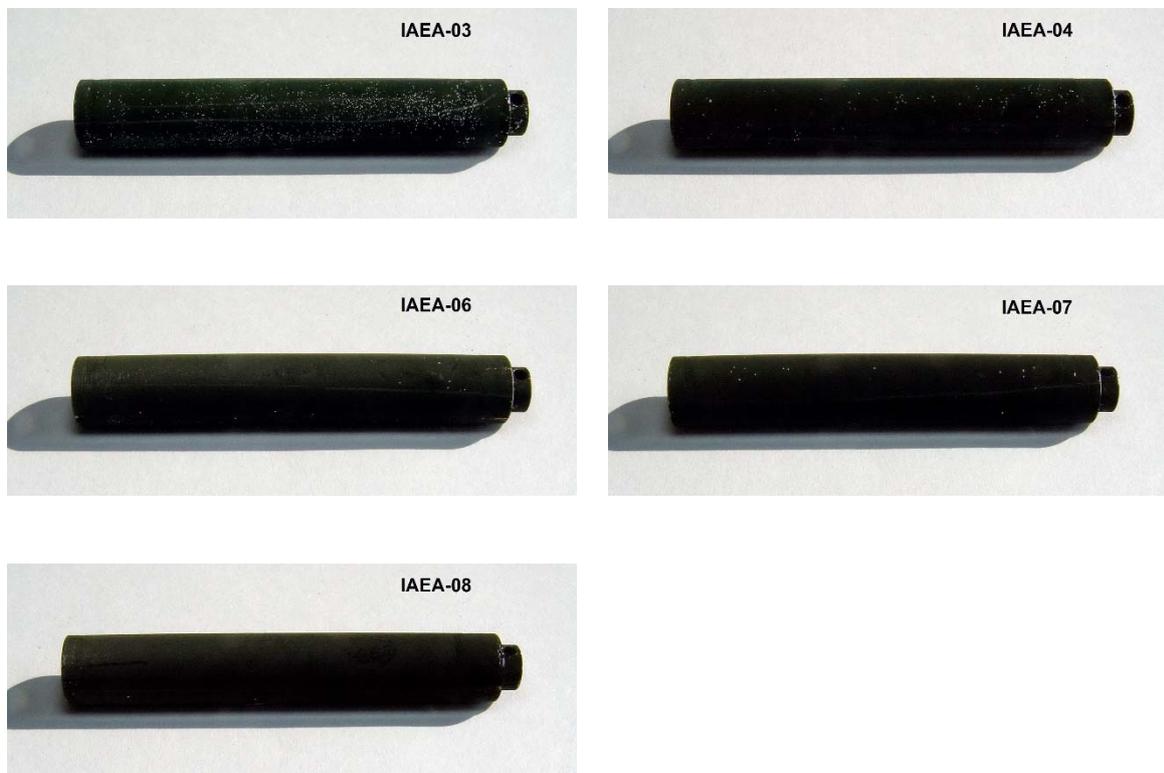


Рис. 130. Образцы с Cr покрытием после окисления в атмосфере водяного пара.

4.5.2. Испытание на окисление в атмосфере воздуха образцов из Zr1%Nb с PVD Cr покрытием

Как показано в таблице 38, в атмосфере воздуха привес массы образца с Cr покрытием был выше (IAEA-01: 0,07 г), чем у образцов, подвергавшихся окислению в атмосфере водяного пара при той же температуре и в течение того же времени (IAEA-08: 0,03 г).

Привес массы на единицу поверхности составил $\Delta m/A=40 \text{ г/м}^2$. Как показано на рис. 131, поверхность образцов стала темной, но не такой темной, как после окисления в атмосфере водяного пара, как показано на рис. 130. Образец из циркония при аналогичных условиях, указанных на рис. 132, показывает примерно в десять раз более высокий привес массы (491 г/м^2).



Рис. 131. Образец IAEA-01 с Cr покрытием в кварцевом тигле до (слева) и после (справа) окисления в атмосфере воздуха при 1200°С в течение 3600 с.



РИС. 132. Образец из Zr до (слева) и после (справа) окисления в атмосфере воздуха при 1200°C в течение 2700 с с нормализованным привесом массы $\Delta m/A=491 \text{ г/м}^2$.

При детальном рассмотрении поверхности трубки с Cr покрытием оказалось (рис. 133 и рис. 134), что после окисления в атмосфере воздуха образовалась неоднородная структура.

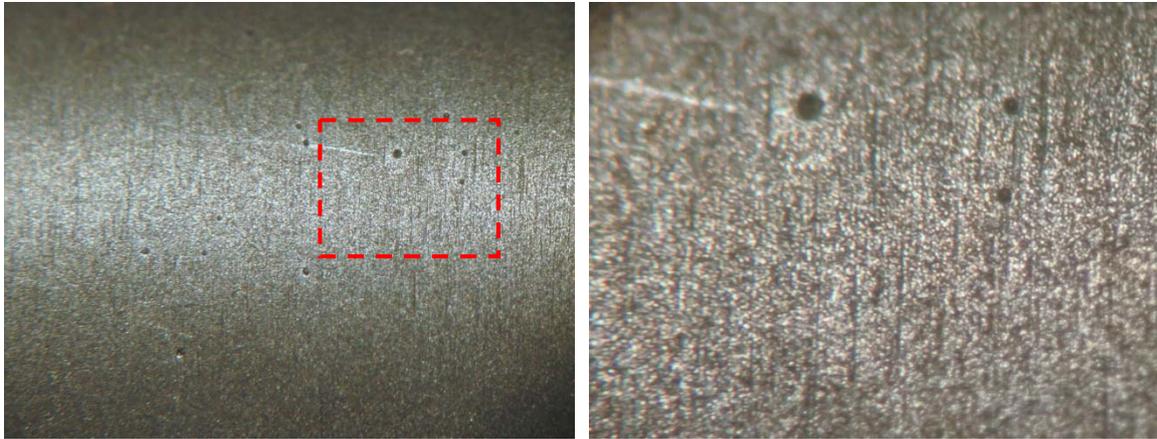


РИС. 133. Поверхность образца с Cr покрытием при получении.

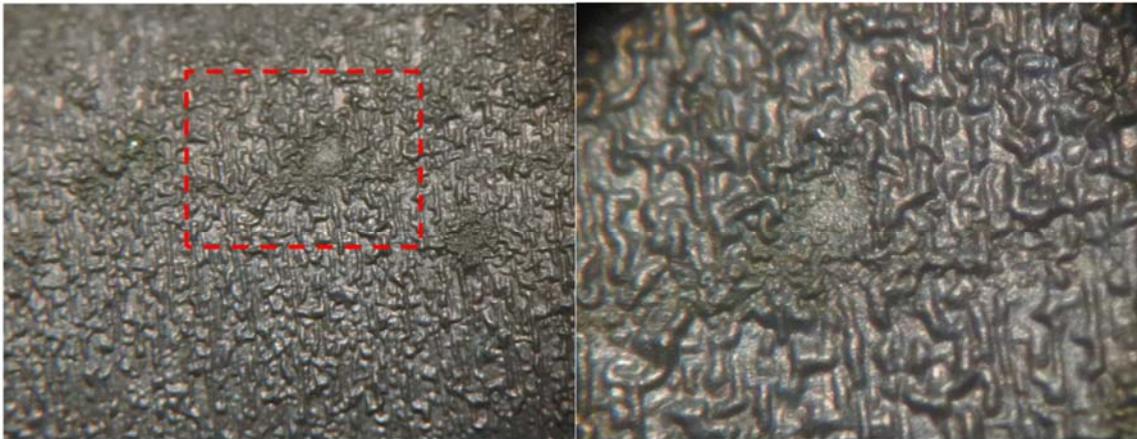


РИС. 134. Поверхность образца IAEA-01 с Cr покрытием после окисления в атмосфере воздуха (1200°C, 3600 с).

4.5.3. Испытания на сжатие кольца

Результаты испытаний на сжатие кольца показали значительные различия между эталонными трубками оболочки из Zr1Nb и трубками с Cr покрытием.

Образец IAEA-03 с Cr покрытием, подвергнутый окислению при 1100°C в течение 3600 с, показал пластичное поведение. После пластической деформации при значительном перемещении продолжалось пластичное плато нагрузки. Эталонный образец IAEA-02 из Zr выдержал максимальную нагрузку 450 Н. После этого дальнейшая деформация происходила при все меньшей и меньшей нагрузке, но, как показано на рис. 135, не наблюдалось явного разрушения этого образца.

Окисление при температуре 1200°C в течение 1800 с привело к тому, что образец IAEA-05 из Zr стал хрупким с максимальным значением нагрузки ≈ 300 Н. Большой спад нагрузки при деформации 1,5 мм свидетельствовал о хрупком разрушении образца. Кольца IAEA-06 с Cr покрытием выдерживали нагрузки свыше 500 Н и сохраняли пластичность (рис. 136).

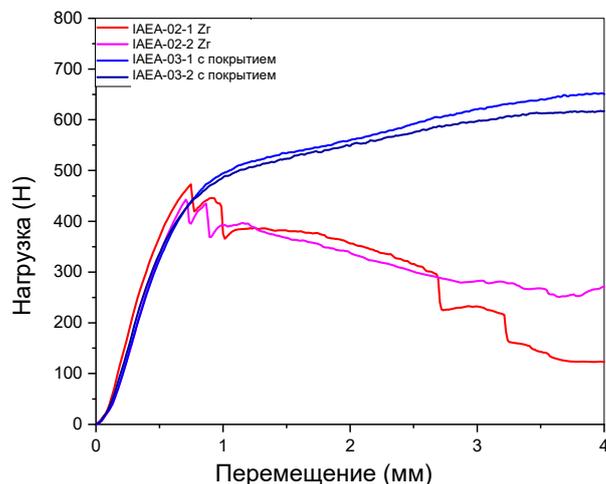


РИС. 135. Кривые «нагрузка-перемещение» испытаний на сжатие кольца образцов из Zr и образцов с покрытием после окисления при 1100°C в течение 3600 с.

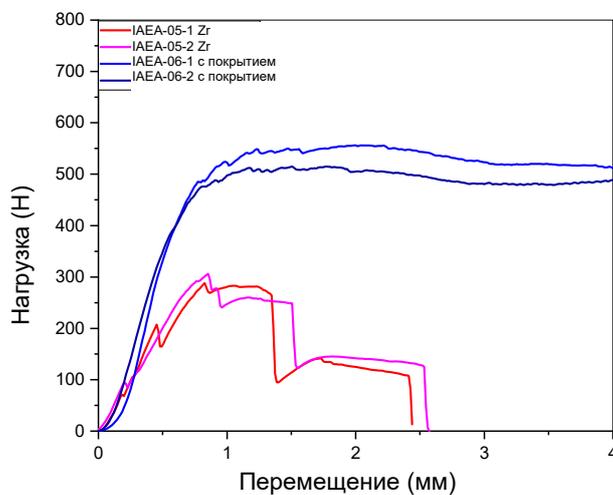


РИС. 136. Кривые «нагрузка-перемещение» испытаний на сжатие кольца образцов из Zr и образцов с покрытием после окисления при 1200°C в течение 1800 с.

Длительное воздействие с окислением не привело к значительным изменениям в механическом поведении образцов с Cr покрытием. Кривые «нагрузка-перемещение» для колец из образцов IAEA-03 и IAEA-04, подвергнутых окислению при 1100°C, были близки друг к другу, несмотря на большую разницу в времени окисления (3600 с и 10800 с). Кривые «нагрузка-перемещение» образцов с Cr покрытием IAEA-06, IAEA-07 и IAEA-08, подвергнутых окислению при 1200°C в течение 1800 с, 2700 с и 3600 с соответственно, показали аналогичные тенденции на рис. 137 и рис. 138.

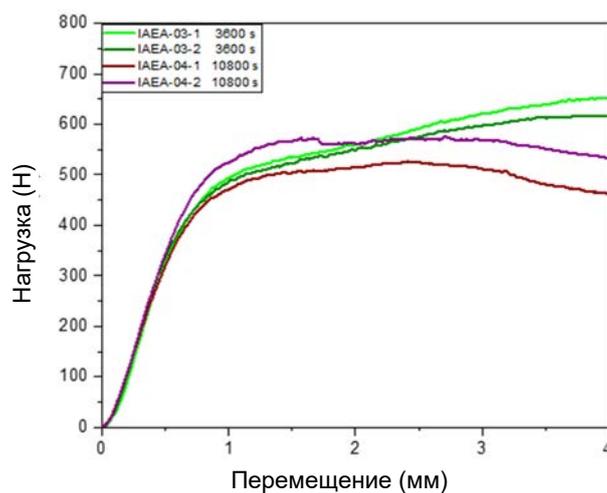


РИС. 137. Кривые «нагрузка-перемещение» испытаний на сжатие кольца образцов с покрытием после окисления при 1100°C в течение 3600 с и 10800 с.

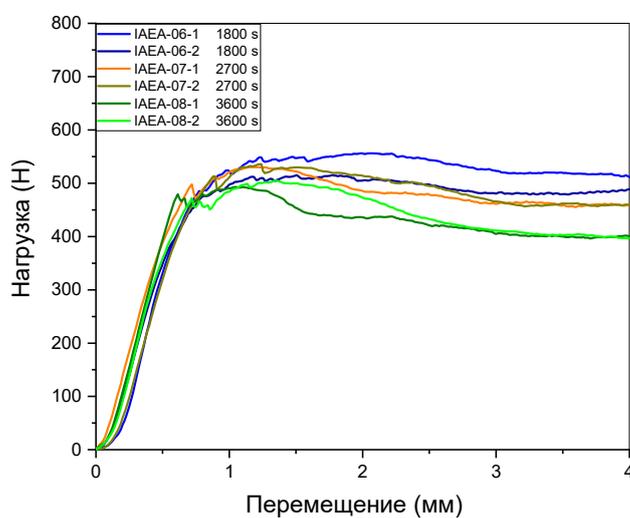


РИС. 138. Кривые «нагрузка-перемещение» испытаний на сжатие кольца образцов с покрытием после окисления при 1200°C в течение 1800, 2700 с и 3600 с.

Изменения массы образцов, подвергшихся окислению в атмосфере пара и воздуха, были существенно разными. Однако привес массы, по-видимому, значительно повлиял на нагрузочные способности образцов. Как показано на рис. 139, полученные кривые для этих образцов были близки друг к другу.

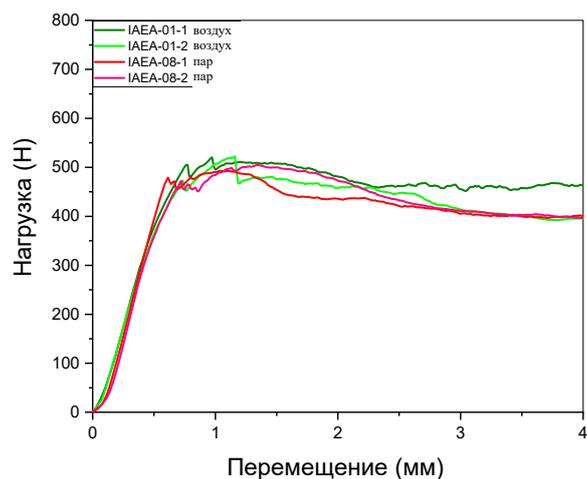


Рис. 139. Кривые «нагрузка-перемещение» испытаний на сжатие кольца образцов с покрытием после окисления при 1200°C в течение 3600 с в атмосфере водяного пара и воздуха.

Перед механическими испытаниями были измерены геометрические параметры кольцевых образцов (таблица 39).

ТАБЛИЦА 39. ГЕОМЕТРИЧЕСКИЕ ДАННЫЕ КОЛЬЦЕВЫХ ОБРАЗЦОВ

Кольцевой образец	Диаметр (мм)				Длина (мм)				Толщина (мм)			
	d ₁	d ₂	d ₃	d	l ₁	l ₂	l ₃	l	v ₁	v ₂	v ₃	v
IAEA-01-1	9,16	9,18	9,20	9,18	7,98	8,01	8,00	8,00	0,72	0,73	0,72	0,72
IAEA-01-2	9,23	9,18	9,30	9,24	7,82	7,75	7,83	7,80	0,74	0,70	0,73	0,72
IAEA-02-1	9,10	9,15	9,09	9,11	8,25	8,26	8,19	8,23	0,64	0,63	0,62	0,63
IAEA-02-2	9,15	9,21	9,14	9,17	8,20	8,14	8,18	8,17	0,62	0,64	0,62	0,63
IAEA-03-1	9,12	9,13	9,16	9,14	7,68	7,72	7,67	7,69	0,64	0,62	0,64	0,63
IAEA-03-2	9,15	9,16	9,19	9,17	8,00	8,10	7,92	8,01	0,72	0,73	0,65	0,70
IAEA-04-1	9,10	9,18	9,12	9,13	7,40	7,39	7,38	7,39	0,60	0,63	0,70	0,64
IAEA-04-2	9,17	9,14	9,19	9,17	8,13	8,15	8,17	8,15	0,66	0,70	0,64	0,67
IAEA-05-1	9,08	9,14	9,21	9,14	7,13	7,14	7,06	7,11	0,64	0,54	0,66	0,61
IAEA-05-2	9,07	9,12	9,26	9,15	7,30	7,32	7,28	7,30	0,63	0,64	0,64	0,64
IAEA-06-1	9,20	9,16	9,13	9,16	8,15	8,13	8,15	8,14	0,64	0,65	0,66	0,65
IAEA-06-2	9,18	9,15	9,17	9,17	7,90	7,90	7,90	7,90	0,64	0,67	0,64	0,65
IAEA-07-1	9,17	9,18	9,13	9,16	8,19	8,19	8,16	8,18	0,62	0,64	0,66	0,64
IAEA-07-2	9,15	9,21	9,18	9,18	8,21	8,23	8,20	8,21	0,64	0,62	0,68	0,65
IAEA-08-1	9,16	9,18	9,24	9,19	8,13	8,09	8,12	8,11	0,63	0,60	0,62	0,62
IAEA-08-2	9,12	9,15	9,19	9,15	7,79	7,79	7,78	7,79	0,60	0,63	0,64	0,62

Максимальное усилие, удельная энергия при отказе и максимальные значения перемещения перечислены в таблице 40. Максимальные нагрузки для колец с Cr покрытием, за исключением одного образца, достигали 500 Н и более высоких значений. Максимальные усилия для Zr образцов без покрытия были ниже. Удельная энергия при отказе со значениями ниже 50 мДж/мм [96] указывает на хрупкое поведение только образца IAEA-05 из Zr.

ТАБЛИЦА 40. РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ НА СЖАТИЕ КОЛЬЦА

Кольцевой образец	Макс. усилие [Н]	Удельная энергия при отказе [мДж/мм]	Температура [°С]	Макс. перемещение [мм]
IAEA-01-1	575,0	298,8	135	5,21
IAEA-01-2	522,6	225,7	135	4,31
IAEA-02-1	473,0	139,6	135	4,11
IAEA-02-2	442,9	171,7	135	4,67
IAEA-03-1	652,5	440,5	135	6,08
IAEA-03-2	959,8	476,1	135	6,60
IAEA-04-1	526,8	341,5	135	5,67
IAEA-04-2	575,4	317,4	135	5,00
IAEA-05-1	288,5	38,3	135	5,19
IAEA-05-2	306,1	42,8	135	1,51
IAEA-06-1	575,1	364,3	135	6,05
IAEA-06-2	636,2	357,8	135	6,01
IAEA-07-1	678,1	339,6	135	5,81
IAEA-07-2	535,8	325,7	135	5,93
IAEA-08-1	492,8	230,2	135	4,67
IAEA-08-2	504,9	240,6	135	4,56

4.5.4. Исследования методом СЭМ

Исследуемый образец имел маркировку IAEA-08 и подвергался окислению при 1200°С в атмосфере водяного пара. Период окисления составил 3600 с. Он был исследован как в состоянии после получения, так и после шлифовки и полировки. Элементный состав и распределение наиболее интересных элементов исследовались с помощью энергодисперсионного рентгеновского микроанализатора (ЭДС) компании «Оксфорд» с кремниевым дрейфовым детектором. Этот тип ЭДС можно использовать в режиме высоких уровней тока пучка, необходимыми для микроанализа различных твердых образцов. Использовались значения ускоряющего напряжения 5 и 30 кВ. Большая часть изображений в обратно рассеянных электронах (ОРЭ) была получена для внешнего оксидного слоя и прилегающего металла образца. При линейном сканировании хрома, кислорода и циркония вдоль различных областей образца использовалось ускоряющее напряжение 5 кВ. Линейные профили регистрировались с расстояния около 30 мкм от края образца оболочки с покрытием.

На рис. 140 показано типичное ВЭ-изображение внешнего оксидного слоя и прилегающего металла образца при получении. Справа показано ОРЭ-изображение полированной поверхности.

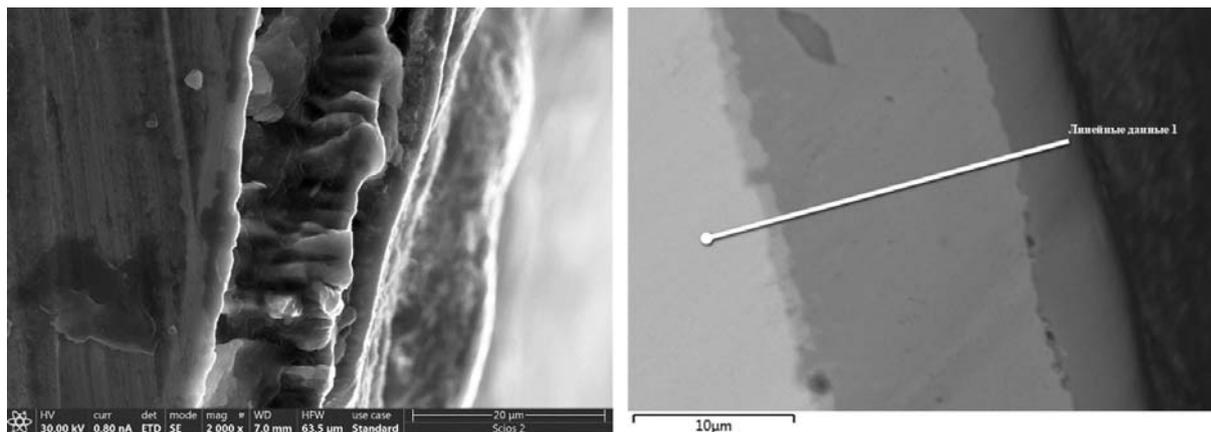


РИС. 140. ВЭ- и ОРЭ-изображения образца оболочки IAEA-08, полученные с увеличением 2000х (слева) и 3500х (справа).

В левой части ВЭ-изображения можно видеть поверхность кольцевого образца из $Zr1\%Nb$ с остатками материала от процесса резки во время подготовки образца. По краю образца можно различить два слоя:

- слой хрома, состоящий из столбчатых зерен, толщиной от 12 до 16 мкм;
- довольно гладкий слой оксида хрома толщиной от 2,1 до 5 мкм, что хорошо согласуется с данными, оцененными на основе измерений привеса массы (таблица 38).

На ОРЭ-изображении, показанном в правой части рис. 140, помимо вышеупомянутых двух слоев был найден третий слой между цирконием и слоем хрома. Толщина этого слоя составляет около 1 мкм.

На рис. 141 показано ОРЭ-изображение образца оболочки с покрытием, на котором представлены области ЭРС-анализа. Результаты ЭРС-анализа представлены в таблице 41. Участок № 11, вероятно, представляет собой зерно с такими примесями, как С, Na, S и Cl.

ТАБЛИЦА 41. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭРС-АНАЛИЗА ОБРАЗЦА IAEA-08

Номер спектра/количество (масс. %)	C	O	Na	S	Cl	Cr	Zr
9	2,62	34,14	—	—	—	63,17	0,07
10	1,73	0,69	—	—	—	97,58	—
11	22,86	3,24	0,65	0,97	0,26	67,95	4,06
12	3,03	0,31	—	—	—	50,51	46,15
13	4,23	—	—	—	—	2,81	92,96

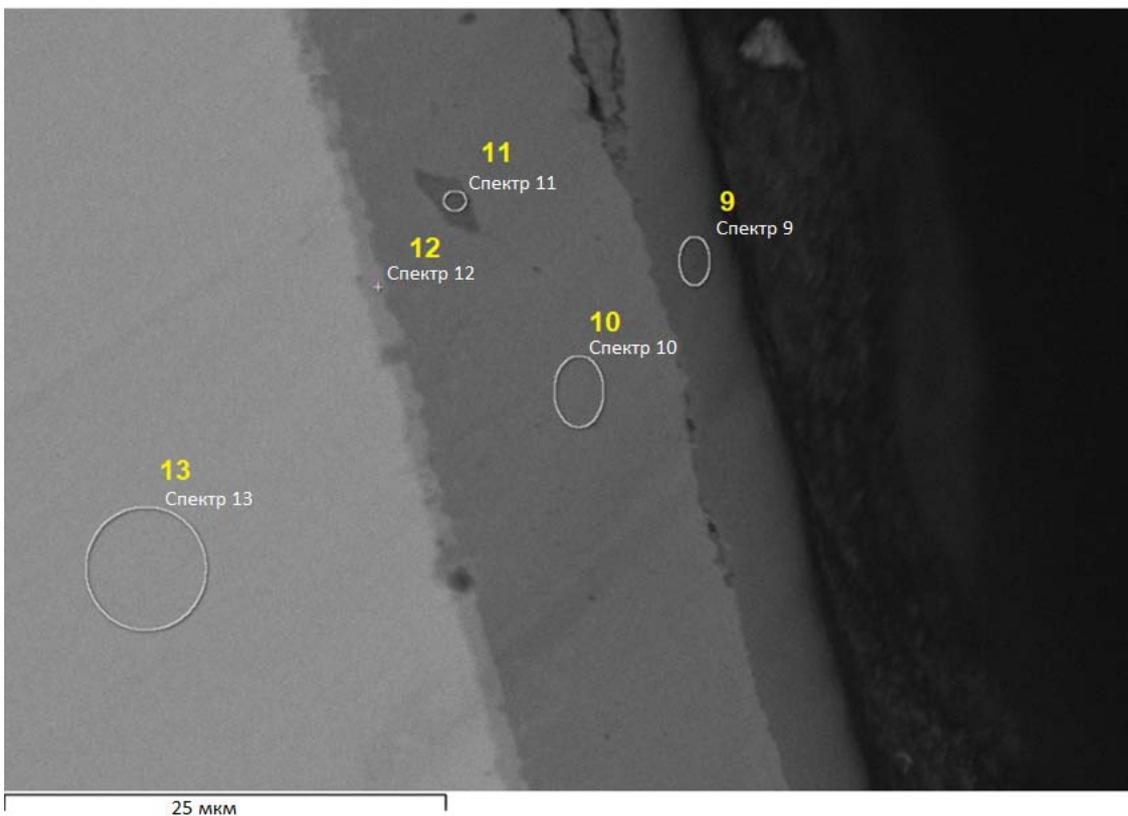


РИС. 141. ОРЭ-изображение и ЭРС-спектры выбранных участков образца IAEA-08.

В промежуточном слое между хромом и цирконием содержится почти такое же количество хрома и циркония. В металлическом цирконии на анализируемом участке было зарегистрировано небольшое количество хрома. В качестве примеси присутствовал в небольшом количестве углерод. На участке № 11 было обнаружено большее количество углерода и небольшие количества натрия, серы и хлора.

На рисунке 142 представлено еще одно ОРЭ-изображение и линейные профили наиболее интересных элементов вдоль выбранной линии на образце.

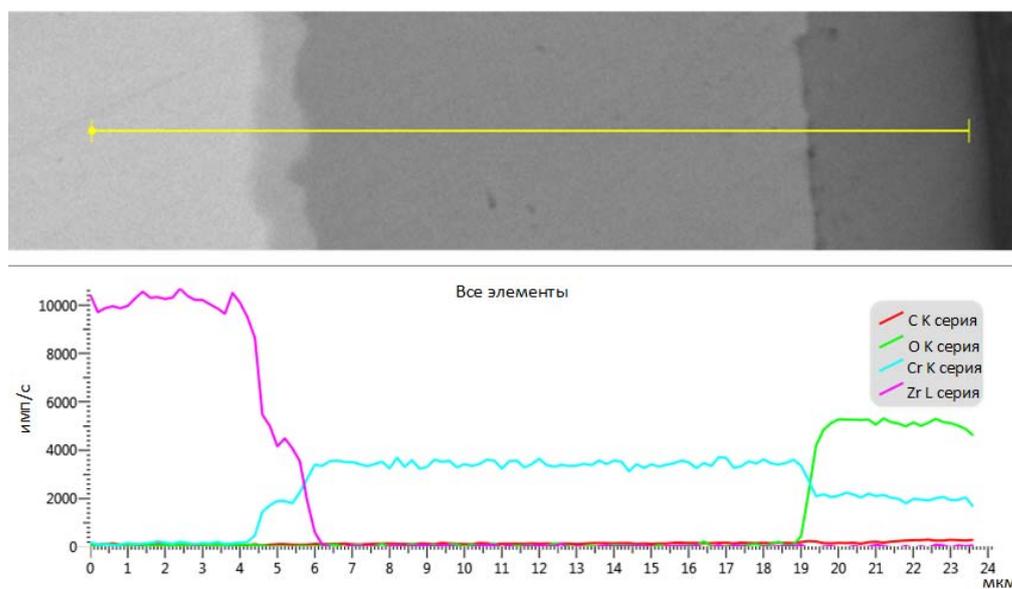


РИС. 142. ОРЭ-изображение с линией линейного сканирования на наличие некоторых важных элементов в образце IAEA-08.

Можно заметить, что в очень тонком (≈ 2 мкм) промежуточном слое между цирконием и хромом количества этих двух важных элементов составляют примерно половину их количеств в чистом металлическом цирконии и слое хрома. То же самое было показано в таблице 41 для анализируемого участка № 12. Линейный профиль кислорода увеличивается на границе между слоями хрома и оксида хрома. В слое оксида хрома обнаружены небольшие количества углерода.

4.5.5. Металлография и микротвердость

Измерения структуры и твердости образца с Cr покрытием и эталонного образца из Zr были выполнены с использованием оптической микроскопии. Условия окисления были одинаковыми. Для металлографического анализа и измерения микротвердости были выбраны два образца:

- IAEA-05 (эталонный, из Zr, окисление в атмосфере водяного пара при 1200°C в течение 1800 с) — рис. 143;
- IAEA-06 (с Cr покрытием, окисление в атмосфере водяного пара при 1200°C в течение 1800 с) — рис. 144.

Металлографические исследования проводились с помощью инвертированного оптического микроскопа типа GX53F компании «Олимпус». Измерения микротвердости проводились методом испытания на твердость по Виккерсу. Использовался алмазный индентор пирамидального типа с углом 136° между противоположными гранями и с усилием 20 г. Отпечаток, оставленный на поверхности образцов, оценивался в соответствии со стандартом ASTM E384-17 и с помощью оптического микроскопа типа Me-F2 компании «Райхерт».

В ходе этих исследований были использованы части торцевых заглушек исходных образцов. Образцы были залиты эпоксидной смолой, а срезы были отшлифованы и отполированы.

В образце из Zr IAEA-05 выявлена классическая структура [97] окисленной губки на основе оболочки из Zr1%Nb. На поверхности образовалась пленка окалины толщиной 110 мкм, которая, по-видимому, является плотной, как показано на рис. 143. Насыщенный кислородом α -слой под оксидом был неоднородным и может быть охарактеризован большими вторжениями в β -фазу. Средняя толщина α -фазы составляла около 200 мкм. Внутренняя часть оболочки имела исходную β -фазовую структуру, но α -вторжения были длинными и в некоторых местах достигали внутренней поверхности трубки. Длинные α -вторжения (типичные при температуре окисления 1200°C) могут способствовать развитию трещин через стенки оболочки.

На внешней поверхности образца IAEA-06 из Zr с Cr покрытием при окислении образовалось лишь небольшое количество оксида хрома толщиной несколько микрон. Сохранилась значительная часть (15–20 мкм) исходного Cr покрытия. Оболочка из Zr под Cr покрытием претерпела лишь незначительные изменения. На расстоянии около 100 мкм от поверхности наблюдался светлый слой, а остальная часть металлического Zr имела более темный оттенок.

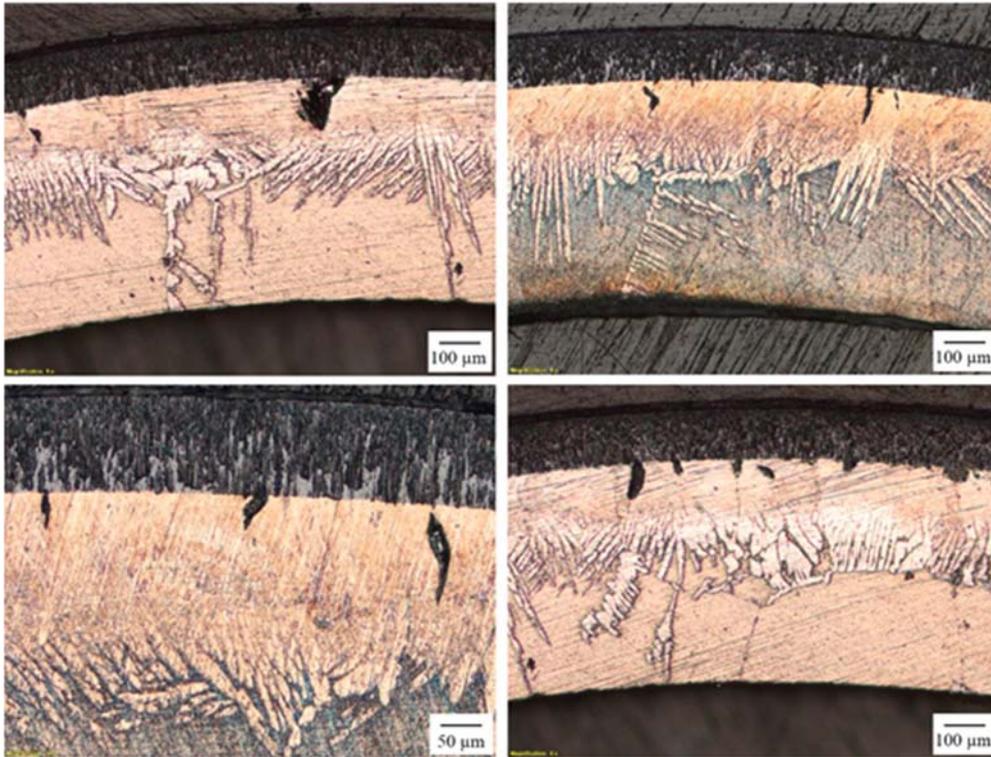


РИС. 143. Металлографические изображения образца IAEA-05 (Zr1Nb).



РИС. 144. Металлографические изображения образца IAEA-06 (Zr1Nb с Cr покрытием).

Измерения микротвердости проводились на нескольких радиальных участках металлической части образца. Нулевые точки на горизонтальных осях, показанных на рис. 145 и рис. 146, соответствуют границе раздела «оксид-металл» в случае образца IAEA-05 из Zr и границе раздела Cr-Zr в случае образца IAEA-06 с Cr покрытием.

Измеренные точки свидетельствовали о том, что, как показано на рис. 145, локальная твердость в направлении от периферии к внутренней поверхности образца МАГАТЭ-05 значительно изменялась. α -слой в оболочке имел очень высокие значения твердости (между 400 и 900) с тенденцией к снижению в радиальном направлении. В β -слое твердость была ниже 300.

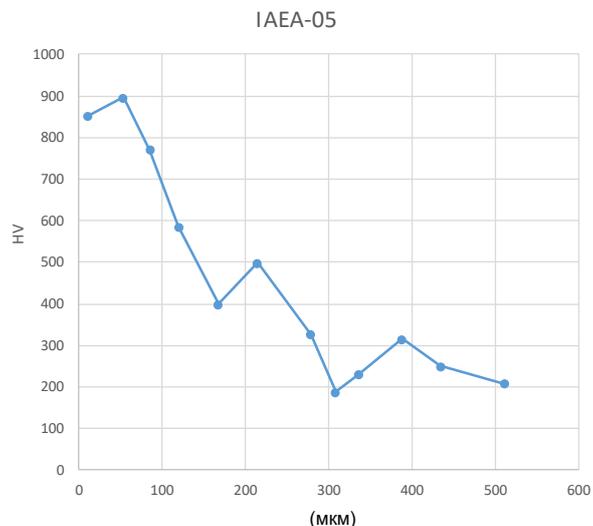


РИС. 145. Микротвердость металлической части образца IAEA-05.

В случае образца IAEA-06 твердость внешнего 100 мкм слоя составляла около 350–400. Как показано на рис. 146, твердость в остальной части трубки оболочки составляла от 170 до 240. Это объясняет высокую остаточную пластичность образца с небольшим увеличением твердости вблизи покрытия, вероятно, вследствие взаимной диффузии.

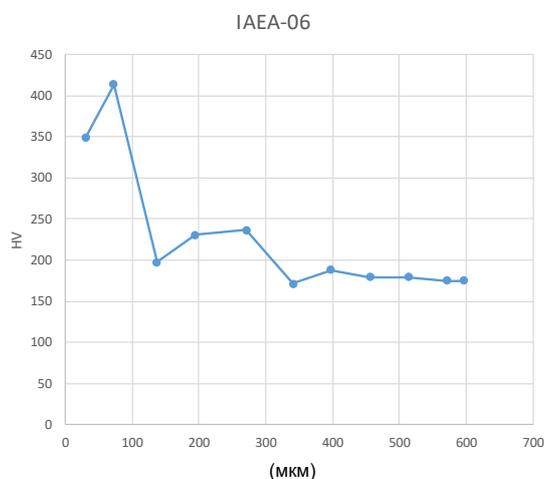


РИС. 146. Микротвердость металлической части образца IAEA-06.

4.6. ОБСУЖДЕНИЕ

Четыре различные лаборатории провели испытания на высокотемпературное окисление в заранее определенных условиях четырех образцов-кандидатов на использование в оболочке ATF.

Вкратце, окисление основного объема материала AISI 348 сильно зависит от температуры пара. При 1100°C толщина варьировалась от 200 мкм до 450 мкм, а при 1300°C — от 520 мкм до 1050 мкм. С повышением температуры содержание Fe во внутреннем слое увеличивается, а Cr — уменьшается, причем содержание Fe увеличивается (незначительно) также и во внешнем оксидном слое. Содержание Cr во внешнем слое очень низкое, независимо от температуры (в целом типичная двухслойная структура оксида). Во внешнем слое наблюдалось повышенное содержание Mn по сравнению с внутренним слоем. Вообще говоря, типичная топливная оболочка толщиной ~0,5 мм из AISI 348 в этом температурном

диапазоне быстро разрушается. В результате базовый материал AISI 348 не может обеспечить ожидаемой достаточной устойчивости ядерного топлива к авариям.

Толщина покрытия и оксидных слоев в образцах от ЧТУ из Zry-4 с Cr покрытием также зависит от температуры пара. При 1100°C толщина составляла около 10 мкм, при 1200°C — около 15 мкм, а при 1300°C толщина колебалась от 40 до 400 мкм. Покрытие образцов после воздействия при 1100°C и 1200°C было непрерывным. Однако были обнаружены трещины между покрытием и оксидным слоем. У образца, подвергнутого воздействию при температуре 1200 °C, также имелись трещины в слое оксида. Покрытие образца, подвергавшегося воздействию при температуре 1300°C, также было непрерывным, но во время подготовки образца после испытания произошло частичное отслоение покрытия от подложки. Суммарная толщина покрытия и оксидного слоя колебалась от 40 до 400 мкм, т.е. при 1300°C происходит быстрое окисление. В образцах, подвергавшихся воздействию при температурах 1100°C и 1200°C, на внешнем оксидном слое, а также в тонкой обогащенной Cr/Zr зоне между подложкой из Zr и оксидным слоем наблюдалось обогащение по Fe.

В целом, в подвергавшихся воздействию пара образцах из Zry-4 с PVD покрытием МАХ-фаза наблюдались очень высокие уровни окисления. По-видимому, покрытие обладало защитными свойствами, но окисление быстро распространялось из периферийных областей.

МТА ЕК и ЧТУ провели серию экспериментов с трубками оболочки из Zr1Nb с PVD покрытием. Процедура включала окисление в атмосфере водяного пара и воздуха с временами окисления от получаса до трех часов. Изменение механических свойств окисленных материалов было исследовано в ходе испытаний на сжатие кольца. Для определения структурных изменений в трубчатых образцах использовались оптическая и сканирующая электронная микроскопия и измерения микротвердости.

Сравнение трубок из Zr с Cr покрытием с образцами из Zr без покрытия показало, что образцы с покрытием могут выдерживать воздействие высокотемпературного пара без серьезного ухудшения качества. На Cr покрытии образовалась лишь небольшая пленка окислы, и трубчатые образцы сохраняли пластичность.

ВЭ- и ОРЭ-исследования показывают, что после воздействия при 1200°C в атмосфере водяного пара в течение одного часа слой хрома на Zr оболочке был лишь слегка окислен. На границе раздела обнаружен очень тонкий (≤ 10 мкм) промежуточный слой с содержанием циркония и хрома. Толщина слоя хрома составляла 12–15 мкм, а слой оксида хрома имел толщину около 5–6 мкм. Поэтому после испытаний на окисление в атмосфере водяного пара окислилась только внешняя часть хромового покрытия.

Нержавеющая сталь марки AISI 348 демонстрирует более высокое выделение водорода, чем эталонные сплавы на основе Zr без покрытия, показанные на рис. 147.

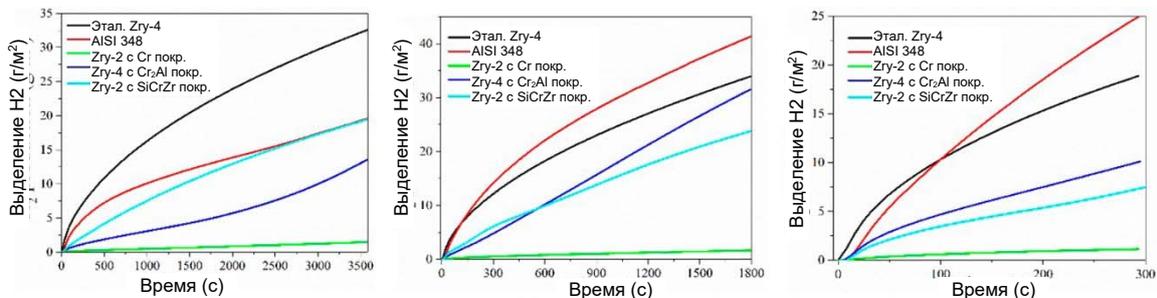


РИС. 147. Суммарное выделение водорода при испытаниях на окисление в атмосфере водяного пара при 1100 °C, 60 мин; 1200 °C, 30 мин и 1300 °C, 5 мин.

Cr покрытие показало превосходную стойкость к окислению и полностью защищало Zr подложку от окисления до 1300°C. Когда температура достигает эвтектической точки 1320–1330°C, происходит ускоренное окисление и быстрое разрушение оболочки. Было также показано, что некоторые из нынешних критериев (например DBT) не применимы непосредственно к материалам с покрытием, и доля наводороживания остается неясной. В целом оно демонстрирует наилучшую стойкость к окислению как в отношении равномерной коррозии, так и в плане высокотемпературного окисления в атмосфере водяного пара. Сплавы Zr с покрытием ZrSi-Cr и МАХ-фаза показали ограниченные преимущества в аварийных условиях. Преимущества покрытия очевидны, особенно при более низкой температуре окисления (1100°C), но при более высоких температурах поведение сопоставимо с поведением эталонных материалов без покрытия. Может потребоваться дальнейшая оптимизация.

5. СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПО МОДЕЛИРОВАНИЮ FeCrAl ОБОЛОЧКИ

5.1. ВВЕДЕНИЕ

Во время второго совещания по координации исследований в рамках ПКИ АКТОФ в июне 2017 года [98] в качестве совместного мероприятия для участников было предложено провести сравнительное исследование по моделированию. В частности, было решено, что заинтересованные организации проведут расчеты характеристик топлива с использованием соответствующих кодов расчета характеристик топлива для набора проблем с топливными стержнями из железо-хром-алюминиевой (FeCrAl) стали в качестве материала оболочки. Целью работы было проведение первоначального, содержательного исследования характеристик FeCrAl оболочки и сравнение результатов применения различных кодов расчета характеристик топлива. В конечном счете эти усилия приведут к получению важной информации о характеристиках FeCrAl оболочки, нынешних возможностях кодов расчета характеристик ядерного топлива при моделировании FeCrAl, а также к выявлению важным областей будущих исследований.

Для целей сравнительного исследования по моделированию с использованием различных кодов расчета характеристик топлива желательнее сначала согласовать один конкретный сплав, а затем применить в кодах согласованный набор моделей материалов и свойств, с тем чтобы получить значимые сравнения. В настоящее время проводятся разработка и определение характеристик сплавов FeCrAl для применения в качестве материала оболочки ядерного топлива. Данные о свойствах материалов по-прежнему ограничены и, в основном, получены путем внереакторных испытаний. Поэтому важно выбрать достаточно хорошо охарактеризованный сплав с имеющимся достаточно полным набором моделей и свойств. В частности, для этой работы был рассмотрен лабораторный оптимизированный сплав С35М, разработанный недавно в Окриджской национальной лаборатории (ОРНЛ) [99–103]. Этот сплав (или аналогичный ему) является ведущим претендентом на использование в испытательном стержне или сборке в коммерческом реакторе в 2022 году, поскольку радиационные испытания были проведены на реакторе «Халден» [103] и проводятся на усовершенствованном испытательном реакторе (УИР) в АНЛ [104]. На основе экспериментальных данных, полученных в ходе испытаний, проведенных в ОРНЛ и на реакторе «Халден», исследователи в ОРНЛ и АНЛ разработали эмпирические модели термомеханических свойств и поведения С35М [99],[100],[102],[103],[105]. Они включали модели зависимости теплофизических свойств от температуры, температурной и радиационной ползучести, объемного распухания и окисления. Кроме того, был разработан критерий отказа с разрушением для FeCrAl в условиях аварии с потерей теплоносителя [105].

В результате этой работы был создан достаточно полный набор моделей и свойств материалов для расчета характеристик топлива с FeCrAl-С35М, а подробная информация для реализации в кодах, а также подробные стандартные спецификации для конкретных сравнительных исследований были предоставлены АНЛ участникам в октябре 2017 года [106]. Модели и свойства материала FeCrAl, используемые в сравнительном исследовании, описаны в разделе 2.1 настоящего доклада. Эталонные случаи представляли собой идеализированные проблемы с оболочкой из FeCrAl, охватывающие как нормальные условия работы реактора, так и условия аварии с потерей теплоносителя.

Концепция сравнительного исследования по моделированию соответствует предыдущим международным мероприятиям по сравнительному анализу (таким, как ПКИ ФУМЕКС и ФУМАК МАГАТЭ), но при этом целью моделирования является материал-кандидат для использования в АТФ. Выбранные случаи реалистичны, с тем чтобы дать возможность провести содержательную оценку характеристик FeCrAl, но они просты, как это необходимо для первоначального моделирования с использованием нового материала, и для того, чтобы облегчить согласованность между результатами анализа, выполненного разными участниками. Это было первое сравнительное исследование по моделированию топлива для АТФ, которое потенциально проложит путь к будущей деятельности по координированным исследованиям в этой области.

В сравнительном исследовании по моделированию АКТОФ для FeCrAl принимали участие в общей сложности 5 организаций, в том числе АНЛ (код BISON), NINE (код TRANSURANUS), ЯААЭ (FEMAXI-7), Университет Сан-Паулу (FRAPCON) и НКАЭ (BACO). Следует отметить, что в случае кодов TRANSURANUS и FRAPCON расчеты для данного сравнительного исследования по моделированию выполнялись внешними пользователями, а не официальными разработчиками кода. Кроме того, версии

этих кодов, используемые в настоящем сравнительном исследовании, были модифицированы организациями-пользователями и отличаются от официальных. Таким образом, результаты применения этих кодов следует рассматривать только как представляющие работу пользователей, и они не обязательно признаются официальными организациями разработчиков кодов TRANSURANUS и FRAPCON.

В настоящей главе мы представим информацию о сравнительном исследовании по моделированию FeCrAl в рамках АКТОФ. Глава имеет следующую структуру. В разделе 5.2 приведены спецификации для конкретных сравнительных исследований. В разделе 5.3 мы приводим описания кодов расчета характеристик топлива, применяемых в данном сравнительном исследовании. В разделах 5.4 и 5.5 мы представляем и обсуждаем результаты расчетов в рамках сравнительных исследований для нормальных условий работы и условий аварии с потерей теплоносителя, соответственно. В разделе 5.6 изложены выводы по результатам работы.

5.2. СПЕЦИФИКАЦИИ ДЛЯ РАСЧЕТОВ В РАМКАХ СРАВНИТЕЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

АНЛ предоставила подробные стандартные спецификации для конкретных сравнительных исследований другим организациям, участвующим в АКТОФ [106]. Предлагаемые конкретные случаи относительно просты и включают короткий топливный стержень PWR, облучаемый в идеализированных нормальных условиях эксплуатации, и расчеты только для оболочки в условиях аварии с потерей теплоносителя (LOCA). Спецификации приведены ниже.

5.2.1. Исследования для случаев нормальных условий эксплуатации

Предложенное конкретное сравнительное исследование для случая нормальных условий эксплуатации LWR — это простое, идеализированное сравнительное исследование короткого (содержащего 10 таблеток) стержня с типичными спецификациями PWR, облучаемого в стационарном режиме. Это конкретное исследование было разработано с целью анализа поведения оболочки FeCrAl при облучении в нормальных условиях эксплуатации и для сравнения с аналогичной проблемой при использовании оболочки из Zry-4. В обоих случаях рассматривается топливо UO₂.

Предполагаемая геометрия включает топливный столб высотой 118,6 мм с топливом UO₂, оболочкой из FeCrAl (или Zry-4), первоначальным радиальным зазором между таблетками и оболочкой 80 мкм и газосборными камерами. Для того, чтобы сделать возможным сравнение двух систем (UO₂/Zry-4 и UO₂/FeCrAl), исходный диаметр экспериментального стержня (внешний диаметр оболочки) и зазор между топливом и оболочкой для них заданы одинаковыми. Толщина оболочки изменяется в зависимости от используемого материала оболочки. В случае FeCrAl оболочка тоньше, с тем чтобы учесть повышенное поглощение нейтронов, обусловленное более высоким значением сечения поглощения нейтронов. Это позволяет иметь несколько больший радиус таблеток при таком же холодном зазоре между таблеткой и оболочкой в стержне. Толщина оболочки для Zry-4 и FeCrAl была получена из [101]. Толщина оболочки из FeCrAl основана на данных нейтронно-физического анализа из [107]. Спецификации обоих экспериментальных стержней представлены в таблице 42.

График линейного изменения тепловыделения состоит из участка линейного нарастания от 0 до 25 кВт/м в течение 3 часов, удержания на постоянной мощности в течение около 4 лет (точнее, 35037 часов, что составляет 4 года от начала испытания), и заключительного сброса мощности в течение 3 часов (рис. 148). Таким образом, считается, что изменения мощности (нарастание и сброс) происходят при скорости линейного изменения мощности около 0,14 кВт/м-мин. Предполагается плоский осевой профиль. Для FeCrAl и Zry-4 используется одинаковый график изменения мощности. В действительности, энерговыделение стержня с FeCrAl оболочкой будет иным, чем стержня с оболочкой на базе Zr, вследствие увеличенной загрузки топлива и обогащения, необходимых для компенсации повышенного поглощения нейтронов. Тем не менее, сравнения, полученные с использованием упрощенного графика изменения мощности, могут дать ценную информацию о реакции стержней с оболочкой из FeCrAl. Следует отметить, что уровень мощности 25 кВт/м относительно высок по сравнению с типичной средней рабочей мощностью для стержней PWR, а 4-летняя продолжительность облучения относительно высока. Эти параметры были выбраны с целью анализа поведения оболочки, включая эффект длительного механического взаимодействия таблеток с материалом оболочки (МВТО), обусловленного тепловым расширением топлива и его газовым распуханием. Мощность и время, выбранные для этого случая,

соответствуют среднему значению выгорания стержня, достигнутому в конце облучения ~ 67 ГВт·сут/тU для случая Zry-4 (меньший радиус таблеток) и ~ 61 ГВт·сут/тU для случая FeCrAl.

ТАБЛИЦА 42. СПЕЦИФИКАЦИИ СРАВНИТЕЛЬНОГО ИССЛЕДОВАНИЯ ДЛЯ СЛУЧАЯ НОРМАЛЬНЫХ УСЛОВИЙ ЭКСПЛУАТАЦИИ.

	Эксп. стержень UO ₂ /Zry-4	Эксп. стержень UO ₂ /FeCrAl
Длина топливного столба (мм)	118,6	118,6
Внешний диаметр таблетки (мм)	8,19	8,57
Внутренний диаметр таблетки (мм)	0	0
Фаска, тарельчатые углубления	нет	нет
Ширина радиального зазора (мм)	80	80
Внутренний диаметр оболочки (мм)	8,35	8,73
Толщина оболочки (мм)	0,575	0,385
Наружный диаметр оболочки (мм)	9,5	9,5
Высота верхней газосборной камеры, (мм)	26	26
Высота нижней газосборной камеры, (мм)	1	1
Суммарный свободный объем (см ³)	1,725	1,874
Начальное давление заполняющего газа (МПа)	2	2
Первоначальный заполняющий газ	He	He
Начальная плотность топлива (%TD)	95	95
Начальное обогащение топлива (%)	5	5
Начальный радиус зерен топлива (мкм)	5	5
Массовый поток теплоносителя на входе (кг/м ² с)	3800	3800
Температура теплоносителя на входе (К)	580	580
Давление теплоносителя (МПа)	15,5	15,5

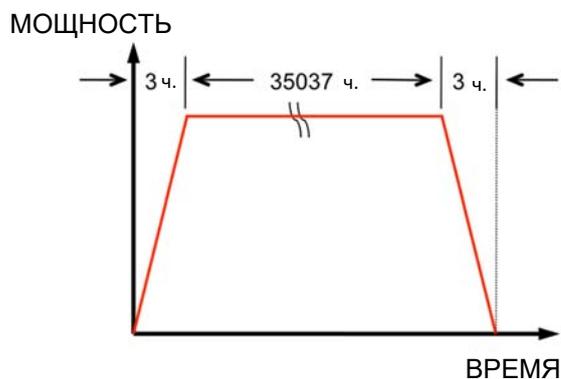


РИС. 148. График изменения мощности для сравнительного исследования случая нормальных условий эксплуатации. Уровень линейной мощности в стационарном режиме составляет 25 кВт/м.

5.2.2. Исследования для случаев условий аварии с потерей теплоносителя

Для расчетов поведения оболочки из FeCrAl в условиях LOCA были рассмотрены спецификации экспериментальных испытаний отдельных эффектов PUZRY от НИИАЭ (АЕК) [108]. Они представляют собой испытания только на вздутие и разрыв оболочки, проведенные на трубках из Zry-4 в четко определенных условиях. В этих экспериментах трубчатые образцы подвергались испытаниям в резистивной печи, обеспечивающей изотермический режим в диапазоне температур 700–1200°C. Внутреннее давление в подвергаемых испытаниям трубках линейно увеличивалось до разрыва образца. Образцы имели длину 50 мм. Образец помещался в кварцевую испытательную трубку, наполненную инертным газообразным аргоном, и нагревался в электропечи. Давление газа в кварцевой трубке поддерживалось постоянным на уровне 0,1 МПа. После периода нагрева примерно 1000 с образец опрессовывался газообразным аргоном с постоянной скоростью роста давления. Скорости роста давления в ходе испытаний составляли от 7×10^{-4} до $2,6 \times 10^{-2}$ МПа/с.

Реальные эксперименты PUZRY проводились на трубках из Zry-4 с внутренним/внешним диаметром 9,3/10,75 мм, соответственно (т. е. толщиной 725 мкм). Для расчетов в рамках АКТОФ мы рассматривали в качестве материала FeCrAl, однако использовали экспериментальные условия и геометрию испытаний PUZRY. Исключением является рассматриваемая толщина оболочки, которая считается меньшей для выполнения реалистичного моделирования. В частности, принятая толщина оболочки для FeCrAl составляет 385 мкм (такая же, что и при условиях нормальной эксплуатации, см. раздел 5.2.1). Спецификации трубок оболочки для расчетов в условиях LOCA приведены в таблице 43. Для моделирования в рамках сравнительных исследований было рассмотрено шесть испытаний из серии PUZRY. Выбор основан на выбранных наборах параметров в рамках ПКИ ФУМАК [109]. Параметры температуры и давления для выбранных испытаний изложены в таблице 44.

Причина выбора наборов параметров PUZRY заключается в том, что учет результатов испытаний отдельных эффектов, связанных только с оболочкой, с четко определенными экспериментальными условиями (история изменения температуры, давления) позволяет избежать сложностей, связанных с общим поведением топливных стержней (термического и механического анализа топлива и оболочки, взаимодействия топлива с оболочкой). Считается, что изоляция поведения оболочки идеально подходит для испытания возможностей кодов и проведения первого сравнительного исследования по моделированию для нового материала. Комплексные исследования характеристик топливных стержней могут быть рассмотрены в рамках будущих сравнительных исследований.

Поскольку эксперименты PUZRY проводились в атмосфере инертного газа (Ar), они не позволяют исследовать влияние окисления. Это может быть уместно для данного первого сравнительного исследования по моделированию, потому что, насколько нам известно, пока еще не имеется моделей высокотемпературного окисления FeCrAl-C35M. В будущем можно провести моделирование условий аварии с потерей теплоносителя с учетом окислительной среды.

ТАБЛИЦА 43. СПЕЦИФИКАЦИИ СТЕРЖНЯ ДЛЯ РАСЧЕТОВ В РАМКАХ СРАВНИТЕЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ДЛЯ УСЛОВИЙ LOCA

	FeCrAl
Сплав трубчатого образца	FeCrAl
Внутренний радиус (мм)	4,65
Толщина (мкм)	385
Длина образца (мм)	50
Длина торцевой заглушки (мм)	5
Атмосфера	Ar
Внешнее давление (МПа)	0,1

ТАБЛИЦА 44. РЕЖИМЫ 6 ИСПЫТАНИЙ В УСЛОВИЯХ LOCA, ВЫБРАННЫХ ДЛЯ РАСЧЕТОВ В РАМКАХ СРАВНИТЕЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Номер стержня	Температура (°C)	Скорость линейного изменения давления (МПа/с)
8	1000	0,00763
10	1100	0,00710
12	1200	0,00723
18	900	0,01151
26	700	0,01193
30	800	0,02630

5.3. ОПИСАНИЕ КОДОВ РАСЧЕТА ХАРАКТЕРИСТИК ТОПЛИВА

5.3.1. BISON

Министерство энергетики (МЭ) США развивает возможности моделирования поведения ядерного топлива в рамках программ усовершенствованного моделирования и имитации в области ядерной энергии (NEAMS) и консорциума по усовершенствованному моделированию легководных реакторов (CASL). Одним из результатов является код BISON [110] – многомерный, основанный на методе конечных элементов код расчета характеристик топлива, разработанный в Айдахской национальной лаборатории (АНЛ).

Код BISON разработан с использованием многоаспектной физической объектно-ориентированной среды моделирования АНЛ, или MOOSE [111]. MOOSE представляет собой массивно-параллельную, основанную на методе конечных элементов платформу, разработанную для решения систем связанных нелинейных уравнений в частных производных с использованием безматричного метода Ньютона-Крылова (JFNK). BISON позволяет создавать линейные, двумерные или трехмерные геометрические представления для анализа глобального поведения топливных элементов, включая локальные многомерные эффекты. Способность кода BISON использовать массово-параллельные вычисления позволяет комплексно анализировать поведение топливных стержней в 2D с учетом подробной истории облучения, а также большие 3D проблемы. Код BISON применяется для анализа различных видов топлива, включая топливные стержни LWR, шаровые топливные элементы с трехслойным покрытием (TRISO), оксидное топливо быстрых реакторов и металлическое топливо в геометрии стержней и пластин. Этот код применим как к стационарным, так и к переходным режимам и используется для анализа поведения топлива в условиях как нормальной эксплуатации, так и проектной аварии.

Уравнения в основе кода BISON представляют собой полностью связанные уравнения в частных производных, описывающие сохранение энергии, массы и импульса. Нелинейная кинематика в BISON следует подходу, описанному в [112]. Модели материалов включены в BISON для топлива UO_2 с целью описания зависящих от температуры и выгорания термических свойств, набухания в результате воздействия твердых и газообразных продуктов деления, уплотнения, растрескивания, смещения фрагментов таблеток, термической и радиационной ползучести [110, 113]. Газовое набухание и выход газообразных продуктов деления рассчитываются с помощью модели, описанной в [114]. Для циркалоевой оболочки имеются модели, описывающие теплофизические свойства, мгновенную пластичность, термическую и радиационную ползучесть, радиационное набухание, окисление, а также фазовый переход, вздутие и разрыв оболочки во время LOCA. Теплопередача в зазоре моделируется традиционным способом, причем общая теплопроводность зазора рассчитывается как сумма теплопроводности газа, повышенной теплопроводности, обусловленной контактом твердых сред, и теплопроводности, связанной с радиационным теплообменом. Учет механического контакта между материалами осуществляется путем использования ограничений в узлах/на гранях [110, 113].

Код BISON включает модели различных других материалов. К ним относятся топливные модели для MOX, U_3Si_2 , U-PU-Zr и U-10Mo, а также модели оболочки для HT9, 316 и FeCrAl. Модели кода BISON более подробно описаны в [110].

Для кода BISON существует широкий набор проблем для верификации кода, начиная от фундаментальных испытаний механики твердого тела и теплопередачи методом конечных элементов и до проблем, специфических для моделей ядерного топлива. Помимо верификации кода была выполнена верификация решения (т.е. численной точности решения) [113].

В начале работы по валидации кода BISON основное внимание уделялось топливу LWR при нормальных условиях эксплуатации и при скачках мощности [115, 116]. В последние годы также была проведена значительная работа по анализу сценариев проектных аварий (ПА), включая как LOCA [117, 118], так и RIA [119, 120]. Для топлива TRISO было рассмотрено несколько случаев сравнительных исследований, в которых результаты применения кода BISON сравниваются с результатами других кодов расчета характеристик топлива [116, 121].

Расширение применения кода BISON на анализ оболочки FeCrAl описано в [105].

5.3.2. TRANSURANUS

TRANSURANUS — это написанная на языке FORTRAN95 компьютерная программа для термического и механического анализа топливных стержней в ядерных реакторах, принадлежащая Объединенному исследовательскому центру Европейской комиссии. TRANSURANUS используется исследовательскими центрами, компетентными органами по ядерной безопасности, университетами и промышленными партнерами (см. [122–134]).

TRANSURANUS обычно называют кодом расчета характеристик топлива, что означает, что он решает уравнения радиального теплообмена, радиального смещения, а также распределения напряжений как в топливе, так и в окружающей его оболочке, и выхода продуктов деления и их поведения как функции времени. Уравнения, как правило, предназначенные для прогнозирования характеристик топлива, описывают следующие явления:

- тепловые характеристики: теплопроводность, излучение и конвекцию;
- механические характеристики: ползучесть (радиационную и высокотемпературную), уплотнение, тепловое расширение, растрескивание и перемещение таблеток, твердотельное и газовое распухание;
- поведение актинидов: обеднение и накопление основных нуклидов U, NP, PU, Am и Cm, влияние на радиальный профиль мощности;
- перекристаллизация топлива: перераспределение Pu и Am, рост зерен (нормальных и столбчатых), формирование центральной полости;
- поведение продуктов деления: их образование в топливной матрице, диффузия к границам зерен, высвобождение в свободный объем стержня после насыщения границ зерен, атермический выход, осколки деления, формирование структуры глубокого выгорания (СГВ, которая обеднена и содержит пористость).

Моделирование теплопередачи в зазоре между топливом и оболочкой осуществляется путем сочетания эффектов теплопроводности, излучения и конвекции (модель URGAP [135]). Основные допущения и уравнения для механических характеристик приведены в [123].

Основные допущения и уравнения для концентраций актинидов можно найти в [133, 134]. В модели TUBRNP расчет радиальных профилей мощности разделяется на а) аппроксимацию потока нейтронов с использованием теории термодиффузии, и б) расчет локальных концентраций соответствующих изотопов актинидов с использованием упрощенных уравнений, описывающих обеднение. Последнее расширение охватывает нуклиды ^{232}Th , $^{233-236,238}\text{U}$, ^{237}Np , $^{238-242}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{243}Am , $^{242-245}\text{Cm}$. Дополнительная информация приведена в [136].

Код TRANSURANUS представляет собой четко определенную механическую и математическую платформу, в которую легко могут быть включены дополнительные физические модели. Код содержит исчерпывающие файлы данных по материалам для оксидных, смешанных оксидных, карбидных и нитридных типов топлива, циркаловых и стальных оболочек и нескольких различных теплоносителей (вода, натрий, калий, свинец, висмут). TRANSURANUS может использоваться как система с единым кодом для моделирования как испытаний с долгосрочным облучением в нормальных условиях эксплуатации, так и испытаний в переходных режимах. Режим «перезапуск» позволяет моделировать повторно изготовленные (переработанные) топливные стержни, в которых, например, полностью изменен заполняющий газ.

Код может использоваться в двух различных подходах: в качестве детерминированного или статистического кода. Перезапуск может быть использован для выполнения статистического анализа с использованием метода Монте-Карло. Эта опция может быть полезна для анализа облучения с длинной базой и с последующим переходным процессом. На рис. 149 представлен обзор этих возможностей.

Помимо гибкости в отношении конструкции топливных стержней, код TRANSURANUS может работать в самых разных ситуациях, как показано в экспериментах, в нормальных, аномальных и аварийных условиях, хотя некоторые модели, специфичные для RIA (например, температура газосборной камеры), все еще находятся в стадии разработки. Кроме того, код используется для BWR, PWR и ВВЭР. Временной масштаб анализируемых проблем может варьироваться от миллисекунд до лет. Таким образом, можно осуществлять моделирование сложных экспериментов по облучению, включая повторно изготовленные инструментированные топливные стержни и изменяющиеся условия эксплуатации.

В настоящих сравнительных исследованиях по моделированию расчеты с использованием кода TRANSURANUS были выполнены компанией NINE. В частности, была использована версия v1m1j15 кода TRANSURANUS, модифицированная путем включения моделей FeCrAl. Расширение TRANSURANUS на анализ FeCrAl описано описано в отдельном вкладе компании NINE в АКТОФ (см. приложение).

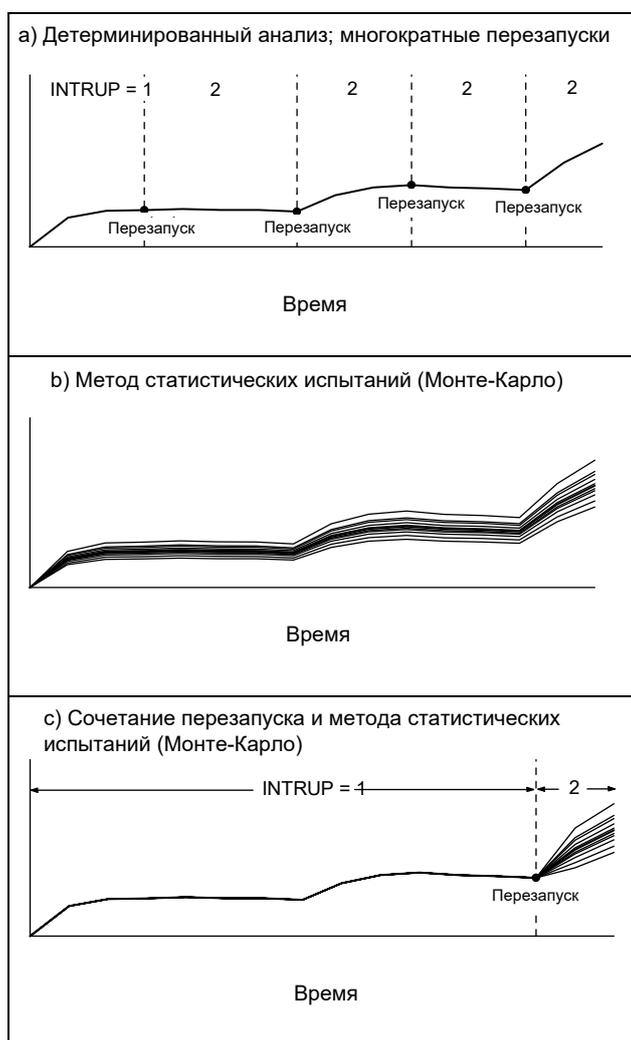


РИС. 149. Иллюстрация детерминированных и вероятностных подходов с перезапусками.

5.3.3. FEMAXI

Первоначальная версия кода FEMAXI была разработана в 1970-х годах на основе анализа локальных деформаций топливных стержней методом конечных элементов [137]. С тех пор были внесены многочисленные улучшения, такие как внедрение моделей ползучести и модельных разработок для

анализа поведения топлива при глубоком выгорании. Характеристики кода FEMAXI-7 кратко описаны ниже. Подробные сведения приведены в [138, 139].

Этот код анализирует поведение одного топливного стержня и примыкающего канала теплоносителя на основе модели одного канала. Код FEMAXI основан на применении метода конечных элементов в осесимметричной системе. Как показано на рис. 150, топливный стержень разбивается на несколько осевых сегментов. При расчетах одномерной теплопроводности/теплопередачи и механики каждый сегмент разбивается на кольцевые элементы. В качестве входных данных используется предыстория энерговыделения как функция времени или выгорания.

Последовательность расчета такова. Во-первых, на основании результатов предыдущего временного шага с целью оценки температурного профиля выполняются расчеты тепловыделения, теплопроводности, теплоотдачи (теплоносителю). Во-вторых, на основе оцененного температурного профиля рассчитываются диффузия и выход газообразных продуктов деления (ПД) и оценивается внутреннее давление в стержне. Затем, исходя из оцененной температуры и давления, проводится линейный механический анализ и эти расчеты повторяются для получения сходимости перед переходом к следующему временному шагу (код также предусматривает возможность выполнения локального анализа МВТО (механического взаимодействия таблетки с оболочкой) для конкретного топливного сегмента в двумерной R-Z геометрии). Модели и корреляции, относящиеся к моделированию поведения таблетки UO_2 и используемые в этом исследовании, кратко описаны в таблице 45.

В этом исследовании свойства оболочки моделируются с использованием спецификаций сравнительного исследования в отношении: теплопроводности, удельного тепловыделения, модуля Юнга, коэффициента теплового расширения, коэффициента Пуассона, температурной ползучести, радиационной ползучести, кривой «напряжение-деформация» (пластичность) с некоторыми незначительными изменениями для реализации кода. Например, моделирование объемного распухания сплава FeCrAl C35M был реализовано путем преобразования объемного расширения в линейное.

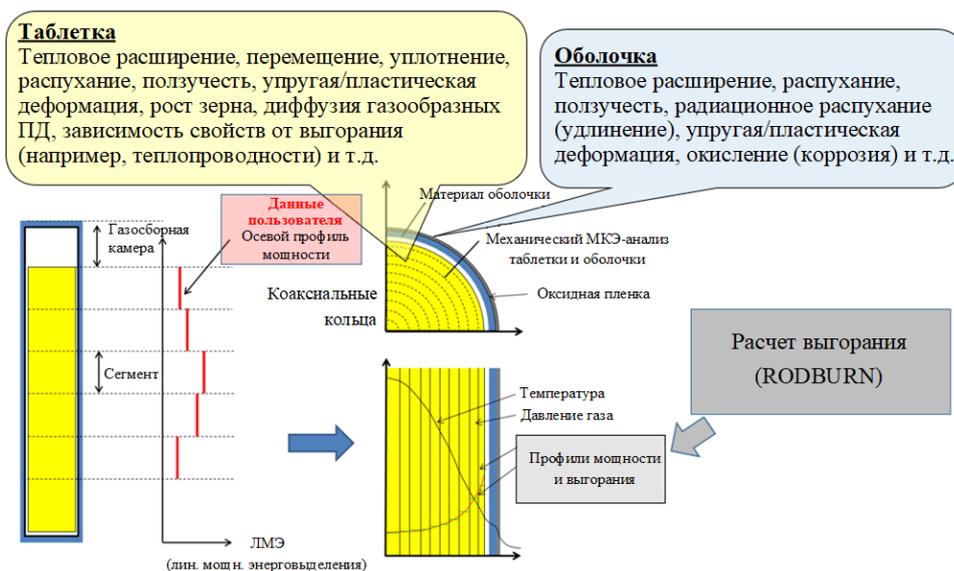


РИС. 150. Общие сведения о генерации сетки при анализе кодом FEMAXI-7 и моделируемых явлениях.

ТАБЛИЦА 45. МОДЕЛИ И КОРРЕЛЯЦИИ ДЛЯ ТАБЛЕТКИ UO_2 , ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ В СРАВНИТЕЛЬНОМ ИССЛЕДОВАНИИ

	Модель	Ссылка
Теплопроводность	Halden	[140]
Коэффициент теплового расширения	Halden	[140]
Плотность	MATPRO-09	[141]
Модуль Юнга	MATPRO-11	[142]

Коэффициент Пуассона	MATPRO-09	[141]
Коэффициент излучения	MATPRO-11	[142]
Ползучесть	MATPRO-11	[142]
Температура отсечки ползучести	1273 К	Предварительно
Распухание	FEMAXI	[138]
Уплотнение	FEMAXI-III	[138]
Макс. уплотнение	1 %	Предварительно
90% завершение уплотнения	5 ГВт.сут/тUO ₂	Предварительно
Перемещение таблеток при запуске	предполагается, что 55% зазора заняты перемещенными фрагментами таблеток	Предварительно
Пластичность	Tachibana	[143]
Удельная теплоемкость	MATPRO-11	[142]
Рост зерна	Itoh	[144]

5.3.4. FRAPCON-USP

Код FRAPCON, разработанный в Тихоокеанской северо-западной национальной лаборатории (PNNL) [145], представляет собой аналитический инструмент для расчета поведения топливного стержня LWR, когда изменения мощности и граничных условий происходят достаточно медленно, что позволяет применить термин «стационарный режим». Это относится к таким ситуациям, как длительные периоды эксплуатации при постоянной мощности и медленные изменения мощности, которые типичны для нормальной работы энергетических реакторов. Код рассчитывает изменение во времени всех важных параметров топливных стержней, включая температуру топлива и оболочки, окружную деформацию оболочки, окисление оболочки, гидрирование, радиационное распухание топлива, уплотнение топлива, выход газообразных продуктов деления и внутреннее давление газа в стержне. Кроме того, код предназначен для генерации начальных условий с целью анализа переходных процессов в топливных стержнях с помощью FRAPTRAN – сопутствующего кода анализа переходных процессов в топливных стержнях.

В FRAPCON используются свойства материалов топлива, оболочки и газов из кода MATPRO, который недавно был обновлен с целью включения в него свойств, зависящих от выгорания, и свойств усовершенствованных сплавов оболочки на основе циркония. Другими свойствами материала, не включенными в обновленный документ MATPRO, являются: выход газообразных продуктов деления, коррозия оболочки и наводороживание оболочки. Модели описаны в [145]. Свойства материалов в FRAPCON-3 содержатся в модульных подпрограммах, которые определяют свойства материалов для температур от комнатной до температур, превышающих точку плавления и для среднего уровня выгорания стержней от 0 до 62 гигаватт-суток на метрическую тонну урана (ГВт·сут/тU). Каждая подпрограмма определяет только одно свойство материала. Например, код FRAPCON-3 содержит подпрограммы, определяющие теплопроводность топлива в зависимости от температуры топлива, плотности топлива и выгорания; тепловое расширение топлива в зависимости от температуры топлива; а также зависимость соотношения «напряжение-деформация» оболочки от температуры оболочки, скорости деформации, деформации в холодном состоянии, содержания гидридов и флюенса быстрых нейтронов.

5.3.5. VASO

VaCo — это код для моделирования термомеханического поведения и поведения газообразных продуктов деления в цилиндрическом топливном стержне в условиях эксплуатации и хранения. Моделирование таблетки UO₂ включает анализ упругой деформации, теплового расширения, ползучести, распухания, уплотнения, перекристаллизации, трещин и выхода газообразных продуктов деления [146,

147]. Для циркалоевой оболочки код моделирует упругую деформацию, тепловое расширение, анизотропную пластическую деформацию, ползучесть и радиационное распухание.

Экспериментальная валидация была основана на ряде конкретных примеров из ПКИ МАГАТЭ, таких, как D-COM, ФУМЕКС I, II, III и ФУМАК, из международной базы данных по экспериментам в области характеристик топлива АЯЭ-МАГАТЭ (IFPE) из базы данных реакторного проекта «Халден» ОЭСР, из слепых испытаний: сравнения кодов расчета характеристик топлива PHWR BARC [148] и сравнительного исследования MBTO в АЯЭ /ОЭСР [149].

Первоначально основное внимание в коде ВаСо уделялось топливу PHWR, такому как топливо реакторов CANDU [150] и «Атуча» [151], но он также может использоваться для расчетов топлива PWR, BWR, ВВЭР, MOX-топлива, экспериментальных прототипов усовершенствованного топлива и необычных видов топлива. Эволюция кода исторически была ориентирована на ядерную программу, осуществляемую Национальной комиссией по атомной энергии (НКАЭ) Аргентины, а именно, на топливо интегрального PWR «КАРЕМ» [152], MOX топливо PHWR [153] и усовершенствованные виды топлива PHWR (такие как топливо CARA) [154].

Моделирование кодом ВаСо таблеток UO_2 позволяет анализировать упругую деформацию, тепловое расширение, ползучесть, распухание, уплотнение, перекристаллизацию, перемещение, трещины и выход газообразных продуктов деления. Для циркалоевой оболочки код моделирует упругую деформацию, тепловое расширение, анизотропную пластическую деформацию, ползучесть и радиационное распухание. Модульная структура кода позволяет легко реализовать анализ различных свойств материалов. Его можно использовать для любых геометрических размеров цилиндрических топливных стержней с таблетками UO_2 (компактными или полыми, с тарельчатыми углублениями или без них) и Zry оболочкой. Особенностью кода ВаСо является возможность полного анализа топлива с механическим контактом между таблеткой и оболочкой или без него на любой стадии облучения.

В программу необходимо вводить данные об истории энерговыделения топливных стержней и температуре внешней стороны оболочки или теплоносителя. Характеристики стержня численно моделируются с использованием конечных временных шагов (конечно-разностная схема). Код автоматически выбирает временные шаги в соответствии с физическими критериями. Обеспечивается расчет температурных профилей таблетки и оболочки, основных нагрузок на таблетку и оболочку, радиальной и осевой картины трещин в таблетке, основных деформаций и геометрии таблетки и оболочки в нагретом состоянии, изменения пористости, размера зерна и перекристаллизации таблетки, выхода газообразных продуктов деления в свободный объем в стержне, распределения захваченного газа в топливе и на границе зерна UO_2 , внутреннего давления газа и текущего состава внутреннего газа и эволюции формы тарельчатого углубления таблетки. Выходные данные показывают распределение этих переменных по оси стержня. Подробные сведения о трактовке механических и термических параметров, а также об уравнениях для таблетки, оболочки и устанавливающих уравнениях приведены в [146], а расширенное описание кода содержится в [147].

В коде ВаСо предполагается, что топливный стержень обладает азимутальной двумерной симметрией в цилиндрических координатах [146]. Хотя угловые координаты не рассматриваются явным образом, явления с угловой зависимостью, а также радиальное растрескивание моделируются методом углового усреднения [155]. Кроме того, код ВаСо выполняет анализ осевого растрескивания и перемещения таблеток. При численном моделировании используются гипотезы осевой симметрии и модифицированных плоских деформаций (постоянная осевая деформация). Для моделирования зависимости осевого профиля энерговыделения топливный стержень разбивается на осевые участки.

Пакет программ кода ВаСо содержит инструментальные средства ВаСо3D [156], статистического анализа [157], расчетов всей активной зоны [151], постобработки графических данных [147] и моделирования условий хранения [158].

5.4. РЕЗУЛЬТАТЫ СРАВНИТЕЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ДЛЯ НОРМАЛЬНЫХ УСЛОВИЙ ЭКСПЛУАТАЦИИ

Случаи, рассматриваемые для моделирования нормальных условий эксплуатации, описаны в разделе 5.2.1. Результаты для этих случаев сравнительных исследований представили в общей сложности пять организаций:

- АНЛ (США), код BISON;
- ЯААЭ совместно с Университетом Васэда (Япония), код FEMAXI-7;
- NINE (Италия), код TRANSURANUS;
- Университет Сан-Паулу (Бразилия), код FRAPCON-USP;
- НКАЭ (Аргентина), код BACO.

Участникам было предложено представить результаты для следующих показателей качества:

- окружной деформации на внутренней и внешней поверхностях оболочки;
- окружного напряжения на внутренней и внешней поверхностях оболочки;
- величины радиального зазора между оболочкой и топливом;
- толщины оксидного слоя;
- температуры на осевой линии твэла;
- внутреннего давления в стержне;
- выхода газообразных продуктов деления.

Следует отметить, что окружная деформация и окружное напряжение оболочки, ширина зазора, толщина оксида и температура на оси топливной таблетки являются локальными значениями в осевом положении, соответствующем средней плоскости топливного столба.

Ниже представлены результаты сравнения результатов расчета: некоторые результаты расчетов для оболочки из Zry-4 – в разделе 5.4.1, а обширное сравнение результатов для оболочки из FeCrAl – в разделе 5.4.2.

5.4.1. Эталонные расчеты для оболочки из циркалоя-4

Моделирование топливных стержней для нормальных условий эксплуатации проводилось в обоих случаях с FeCrAl и Zry-4 в качестве материала оболочки. Эта два случая аналогичны и различаются лишь материалом и толщиной оболочки (см. раздел 5.2.1.). Представление результатов сравнительного испытания начинается с сравнения кодов при анализе Zry-4. Это мотивировано тем, что моделирование традиционной системы UO₂/циркалой: i) в целом в большей степени включено в коды расчета характеристик топлива и служит в качестве ориентира для сравнения с результатами параллельного моделирования характеристик FeCrAl, представленными впоследствии, и ii) обеспечивает проверку согласованности заданных граничных условий.

На рис. 151 показано сравнение результатов расчетов по пяти кодам расчета характеристик топлива с точки зрения изменения во времени окружной деформации на внешней поверхности оболочки. (Следует отметить, что результаты применения кода FRAPCON выражаются в значениях средней деформации по толщине оболочки.) Коды прогнозируют направленную наружу деформацию вследствие теплового расширения во время первоначального пуска, вызванную ползучестью деформацию оболочки внутрь под внешним давлением охлаждающей жидкости до начала МВТО и направленную наружу ползучесть, вызванную расширением топлива после смыкания зазора (например, в результате МВТО). Во время периода окончательного останова зазор возникает снова, что приводит к снятию контактного давления на оболочку твэла и, как следствие, к деформации оболочки внутрь под внешним давлением теплоносителя. Ожидается, что различия в результатах, полученных с помощью различных кодов, будут в первую очередь обусловлены различными применяемыми моделями ползучести Zry-4 и вкладами в деформацию UO₂ топлива, например, вследствие распухания. Однако результаты представляются качественно согласованными. Результаты расчета окружной деформации на внутренней поверхности оболочки аналогичны и не показаны здесь для краткости.

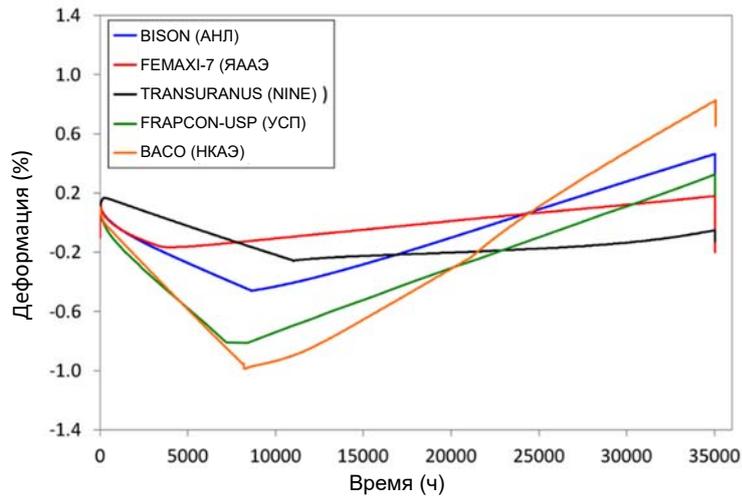


РИС. 151. Сравнение расчетов с помощью кодов окружной деформации на наружной поверхности оболочки (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из Zircaloy-4 при нормальной эксплуатации.

На рис. 152 показано изменение во времени рассчитанной радиальной ширины зазора «топливо-оболочка» в осевой средней плоскости топливного столба. Различия между кодами связаны с различной кинетикой ползучести при сжатии (рис. 151) и моделями других вкладов в деформацию топлива и оболочки. В частности, первоначальное уменьшение ширины зазора связано с тепловым расширением и перемещением топлива, в то время как увеличение ширины зазора в начале кампании связано с уплотнением топлива. Прогнозируемые значения времени смыкания зазора соответствуют изменениям наклона кривых деформации оболочки на рис. 151, так как оболочка начинает деформироваться наружу в результате расширения топлива в условиях МВТО.

На рис. 153 показано сравнение результатов с точки зрения изменения во времени окружного напряжения на внешней поверхности оболочки. (Однако результаты кода FRAPCON выражаются в значениях среднего напряжения по толщине оболочки.) Все коды прогнозируют напряжение сжатия (отрицательное) до возникновения МВТО, так как оболочка подвергается сжатию под действием внешнего давления теплоносителя. Контактное давление на оболочку топлива в результате МВТО приводит к уменьшению напряжений сжатия в оболочке, как это прогнозируется кодами. В конечном счете, напряжение может изменить знак (на положительный) вследствие давления, оказываемого расширяющимся топливом во время МВТО.

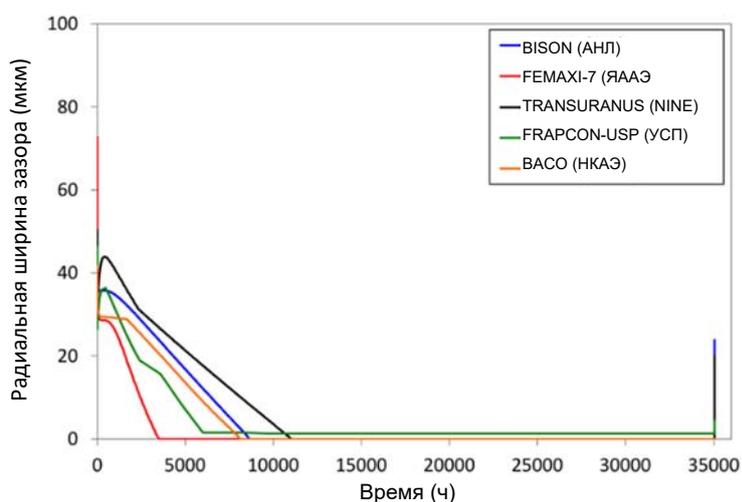


Рис. 152. Сравнение расчетов с помощью кодов радиальной ширины зазора (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из циркалоя-4 при нормальной эксплуатации.

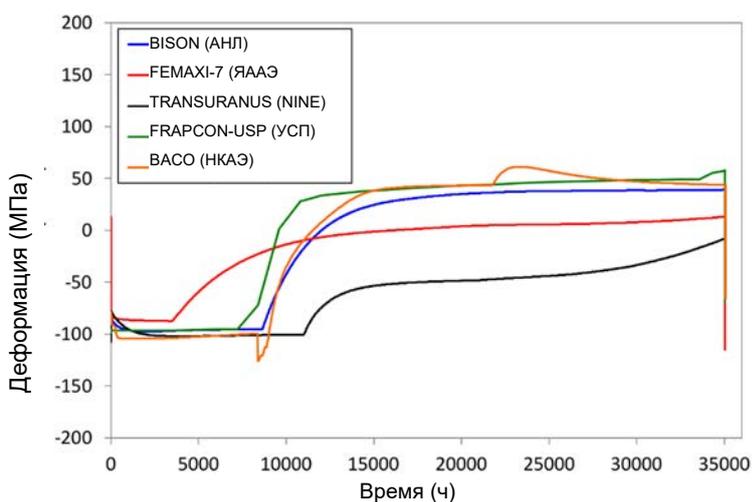


Рис. 153. Сравнение расчетов с помощью кодов окружного напряжения на внешней поверхности оболочки (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из циркалоя-4 при нормальной эксплуатации.

Однако прогнозируемые различными кодами напряжения при МВТО значительно различаются между собой. Следует отметить, что расчетные напряжения в оболочке во время МВТО зависят от моделей, используемых для различных вкладов в деформацию топлива. Таким образом, они в значительной степени зависят от приближений, используемых для представления эффекта растрескивания и ползучести топлива, а также от больших неопределенностей, связанных с этими аспектами моделирования [159].

На рис. 154 показаны прогнозируемые кодами значения толщины слоя оксида на внешней поверхности оболочки в осевом положении, соответствующем средней плоскости топливного столба. Прогнозы от разных кодов достаточно согласованны. В качественном отношении все коды прогнозируют начальную кубическую зависимость роста оксидного слоя от времени (окисление до перехода) и последующий примерно линейный рост (окисление после перехода). Это двухэтапное поведение типично для окисления циркалоя, например, см. [160]. Максимальный разброс расчетной толщины оксида на момент окончания эксплуатации (ОЭ) составляет ~ 15–20 мкм.

На рис. 155 показано сравнение рассчитанной средней температуры топлива для случая оболочки из Zry-4. Первоначально разброс расчетных температур составляет до ~100 К, что, как ожидается, в основном обусловлено различными моделями, используемыми для расчета теплопроводности и перемещения топлива. Последнее влияет на ширину зазора в начале срока службы (НСС) и, следовательно, на теплопроводность зазора и температуру топлива. За исключением кода ВАСО, расчетные температуры представляются достаточно согласованными, при этом различия находятся в пределах неопределенностей. Более значительные различия в сроке службы могут быть вызваны различиями в моделировании сложностей, связанных с поведением при глубоком выгорании, например, ухудшением теплопроводности и эффектами, связанными с образованием структуры глубокого выгорания (СГВ).

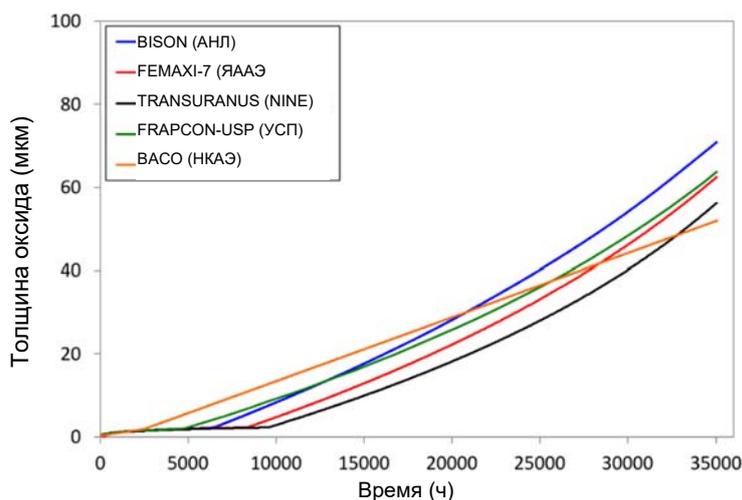


РИС. 154. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов толщины оксидного слоя (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из циркония-4 при нормальной эксплуатации.

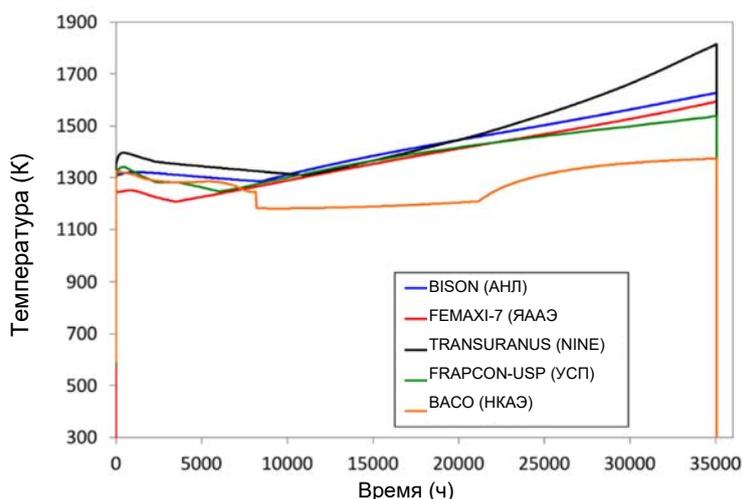


РИС. 155. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов температуры на осевой линии топлива (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из циркония-4 при нормальной эксплуатации.

На рис. 156 показаны результаты применения кодов для расчета суммарного выхода в топливном стержне газообразных продуктов деления. Все коды воспроизводят инкубационное поведение ВГПД (выхода газообразных продуктов деления) [160], хотя прогнозируемые значения времени начала значительного (теплого) выхода значительно различаются. В этой связи следует отметить, что, как было показано, данные расчета с использованием кода FEMAXI-7 согласуются с значением порога Витанза для

ВГПД. Различия между результатами расчетов по разным кодам, как правило, увеличиваются с увеличением времени облучения. Это частично связано с различиями в прогнозируемом наступлении теплового ВГПД, но также и с различными расчетными скоростями ВГПД после инкубационного периода. Они относятся к различным моделям и параметрам, используемым в кодах. Кроме того, поскольку ВГПД является зависящим от температуры явлением, различия в расчетах ВГПД частично объясняются разбросом расчетных температур топлива согласно различным кодам. Наконец, ожидается, что учет ВГПД из СГВ играет роль при выгорании, достигнутом в случае рассматриваемой здесь проблемы с топливным стержнем. Код TRANSURANUS включает в себя специфические возможности в отношении ВГПД из СГВ, которые были применены в настоящей работе. В заключение, коды BISON и FEMAXI прогнозируют быстрое увеличение ВГПД («залповый выброс») во время окончательного останова. Это согласуется с экспериментальными наблюдениями, например, в [162]. В коде BISON при настоящих расчетах была применена модель залпового выброса, описанная в [163, 164]. Аналогичная возможность имеется в коде TRANSURANUS [164], хотя в настоящей работе она не применялась.

Результаты расчета внутреннего давления в топливном стержне показаны на рисунке 157. Все коды прогнозируют увеличение внутреннего давления в топливном стержне по мере роста времени облучения. Различия между кодами частично связаны с различными прогнозируемыми значениями ВГПД. Кроме того, в наблюдаемых различиях, как ожидается, будут играть важную роль различные подходы, используемые в кодах для расчета температуры в газосборной камере. Этот последний аспект является известной проблемой прогнозирования внутреннего давления в топливном стержне, в том числе во время постулированных LOCA [109].

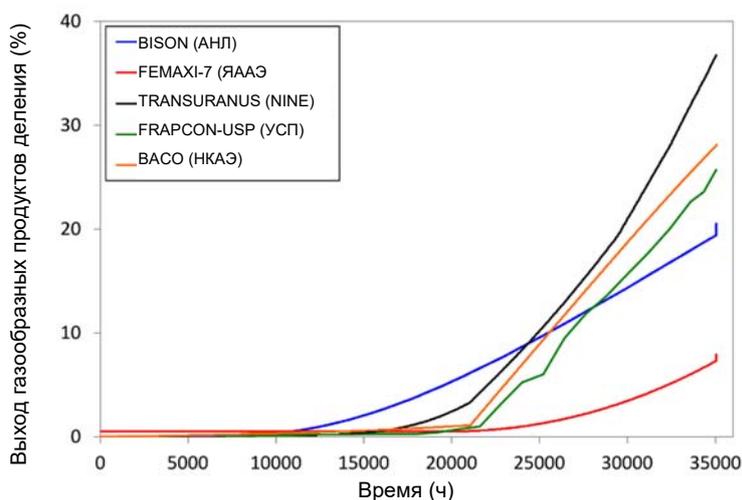


РИС. 156. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов интегрального выхода газообразных продуктов деления для топливного стержня с оболочкой из циркония-4 при нормальной эксплуатации.

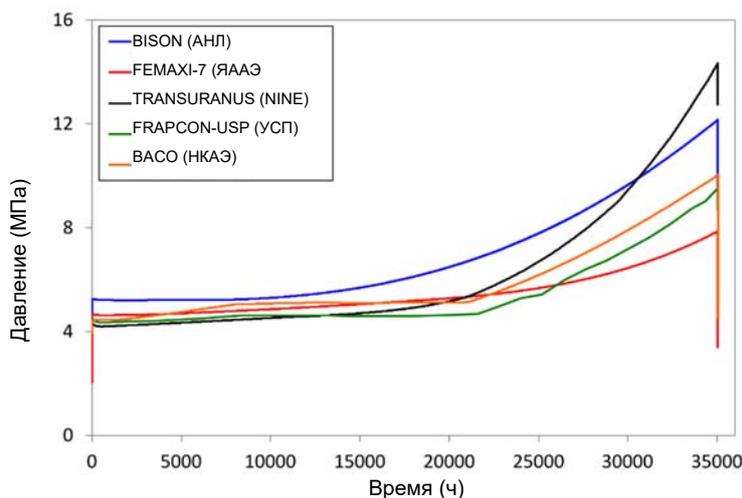


РИС. 157. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов внутреннего давления в топливном стержне с оболочкой из цирколия-4 при нормальной эксплуатации.

5.4.2. Сравнение результатов расчета для оболочки из FeCrAl

В настоящем подразделе приведены данные сравнительных исследований кодов расчета характеристик топлива при анализе случая нормальной эксплуатации топливного стержня с оболочкой из FeCrAl. В кодах были применены модели материалов и свойства сплава FeCrAl C35M, предоставленные АНЛ и описанные в разделе 2.1 и в [106]. Единственным исключением является код BACO, в котором были применены модели для коммерческого сплава FeCrAl (Kanthal).

На рис. 158 показано сравнение результатов расчетов по пяти кодам расчета характеристик топлива с точки зрения изменения во времени окружной деформации на внешней поверхности оболочки в осевом положении, соответствующем средней плоскости топливного столба. (Следует отметить, что результаты применения кода FRAPCON выражаются в значениях средней деформации по толщине оболочки.) Все расчеты показывают ожидаемое качественное поведение, заключающееся в i) положительном напряжении после первоначального пуска вследствие теплового расширения, ii) отрицательном наклоне кривых перед началом МВТО, так как ползучесть приводит к сжатию оболочки под внешним давлением теплоносителя, iii) положительном наклоне кривых после установления контакта между таблетками и оболочкой (в данном осевом положении) и iv) возникновении направленной внутрь деформации в течение периода окончательного останова вследствие повторного возникновения зазора, приводящего к прекращению контактного давления оболочки на таблетки. Коэффициент теплового расширения сплава FeCrAl немного выше, чем у Zry-4, что приводит к более высокой окружной деформации после первого выхода на мощность. До возникновения МВТО уровень обусловленной ползучестью направленной внутрь деформации оболочки из FeCrAl ниже, чем у Zry-4, вследствие более низкой скорости ползучести этого материала (см. раздел 2.1).

После возникновения МВТО изменение деформации оболочки во времени определяется ползучестью оболочки, а также моделями деформации топлива, такими как модели распухания и ползучести. Наблюдаемые различия уровней деформации оболочки во время МВТО объясняются различиями между моделями, используемыми в различных кодах для этих явлений. Следует также отметить, что рассчитанные с помощью кодов значения напряжения топлива в значительной степени зависят от приближений, используемых для представления эффекта растрескивания топлива, и что с этим аспектом моделирования связаны большие неопределенности. В свою очередь, это приводит к неопределенностям в расчетных зависящих от напряжения вкладах в деформацию топлива, например, связанных с ползучестью и газовым распуханием.

Результаты расчета окружной деформации на внутренней поверхности оболочки аналогичны и не показаны здесь для краткости.

На рис. 159 показано изменение во времени рассчитанной радиальной ширины зазора «топливо-оболочка» в осевой средней плоскости топливного столба. Первоначальное уменьшение зазора связано с тепловым расширением и перемещением топлива, в то время как увеличение зазора в начале срока службы связано с уплотнением топлива. Различия в изменении размера зазора во времени согласно разным кодам обусловлены различиями в кинетике деформации оболочки (рис. 158), а также моделями UO_2 , определяющими расчетную деформацию топлива. Все коды прогнозировали задержку смыкания зазора с оболочкой из FeCrAl по сравнению с оболочкой из Zry-4. Это в первую очередь связано с пониженной скоростью ползучести FeCrAl, воспроизводимой кодами.

На рис. 160 показано изменение во времени окружного напряжения на внешней поверхности оболочки в том же осевом положении, что и окружная деформация. (Однако результаты кода FRAPCON выражаются в значениях среднего напряжения по толщине оболочки.) Вначале происходит сжатие оболочки до тех пор, пока не возникнет МВТО. Контактное давление топлива на оболочку при МВТО приводит к уменьшению сжимающих напряжений в оболочке. Как и раньше, точка во времени, в которой происходит контакт, — это точка, в которой наклон кривых значительно изменяется. Оболочка из FeCrAl испытывает более высокие сжимающие напряжения, чем циркаловая оболочка (рис. 153), вследствие меньшей толщины и меньшей скорости ползучести. Повторное возникновение зазора между топливом и оболочкой во время периода окончательного останова приводит к возврату напряжения оболочки в режим сжатия под внешним давлением теплоносителя.

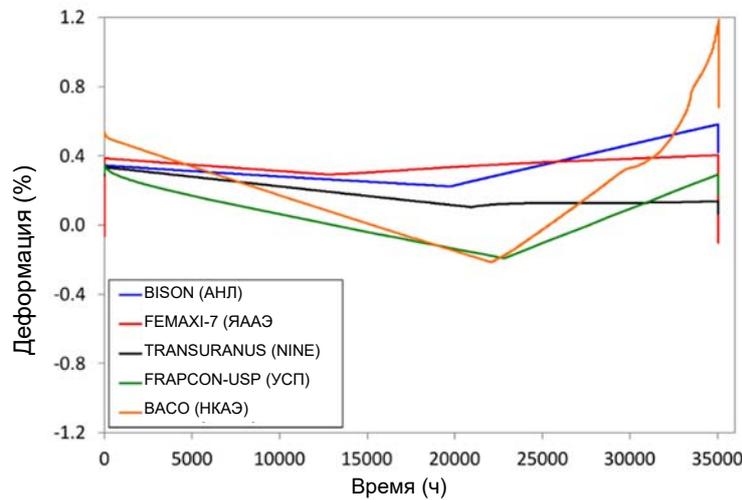


Рис. 158. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов окружной деформации на внешней поверхности оболочки (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

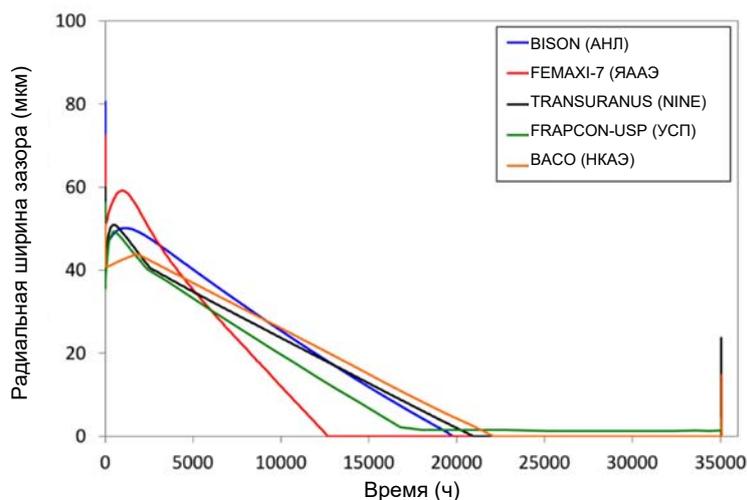


РИС. 159. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов радиального зазора (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

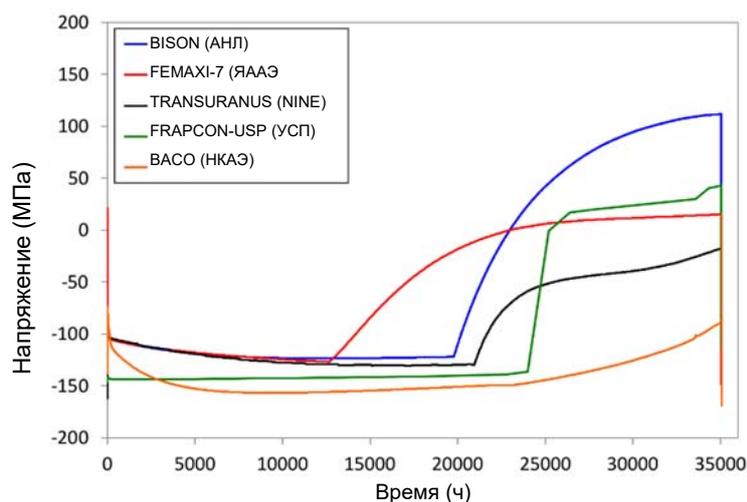


РИС. 160. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов окружного напряжения на внешней поверхности оболочки (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

Полученные с помощью кодов BISON, FEMAXI-7 и TRANSURANUS прогнозы окружного напряжения оболочки в условиях наличия зазора до возникновения МВТО очень хорошо согласуются друг с другом. Такое согласие считается обнадеживающим, также с учетом значительных неопределенностей моделирования, связанных с анализом топливных стержней, и более широким разбросом результатов, наблюдавшимся в ходе предыдущих сравнительных испытаний, которые были связаны с более сложными проблемами топливных стержней (например, ПКИ ФУМЭК-III).

Прогнозируемые напряжения при МВТО в случае расчета различными кодами различаются более значительно. Следует отметить, что расчетные деформации топлива и, следовательно, напряжения и деформации оболочки при МВТО в значительной степени зависят от приближений, используемых для представления эффектов растрескивания и ползучести топлива, и от больших неопределенностей, связанных с этими аспектами моделирования [159].

На рис. 161 показана кинетика роста толщины оксида на внешней поверхности оболочки. Имеются результаты расчета окисления с использованием четырех кодов. Прогнозы роста оксида, полученные с

помощью кодов BISON, TRANSURANUS и BACO, взаимно согласуются. Это является следствием использования одной и той же модели окисления (раздел 2.1.4), а также показывает согласованность расчетов температурных граничных условий на внешней поверхности оболочки на основе предоставленных параметров режима теплоносителя (раздел 5.2.1). В коде FEMAXI кинетика окисления для этих расчетов детально не моделировалась и предполагалась постоянная толщина оксида 0,1 мм. При расчетах с использованием всех кодов прогнозируемая толщина пленки окисления на оболочке из FeCrAl значительно ниже, чем на оболочке из Zry-4. Значительное снижение окисления приведет к снижению выделения водорода. Хотя усовершенствованные сплавы на основе циркония, такие как M5 и ZIRLO, по сравнению с Zry-4 имеют пониженную кинетику окисления, ожидается, что наблюдаемые здесь тенденции будут такими же.

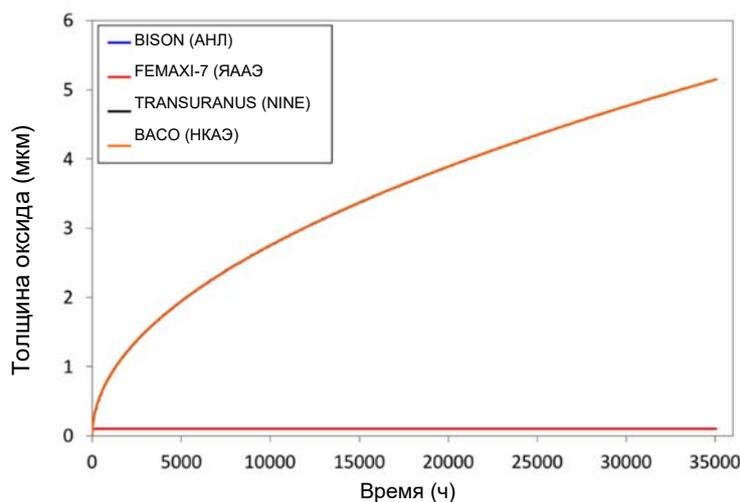


РИС. 161. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов толщины оксидного слоя (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

На рис. 162 показан график изменения во времени температуры на осевой линии топлива. Как и в случае Zry-4 (рис. 155), первоначально разброс расчетных температур составляет до ~100 К, что, как ожидается, связано с различными моделями, используемыми для расчета теплопроводности топлива и перемещения топлива. За исключением кода BACO, расчетные температуры представляются достаточно согласованными, при этом различия находятся в пределах неопределенностей. Как также упоминалось в случае Zry-4, более значительные различия на позднем этапе срока службы могут быть вызваны различиями в моделировании сложностей, связанных с поведением при глубоком выгорании, например, деградацией теплопроводности и эффектами, связанными с образованием структуры глубокого выгорания (СГВ).

При сравнении нынешних расчетов температуры топлива с оболочкой из FeCrAl с расчетами для случая Zry-4 (рис. 155) отмечается, что коды имеют тенденцию к прогнозированию более высокой температуры в стержне с FeCrAl оболочкой на ранних этапах облучения. Это согласуется с пониженным обжатиением вследствие ползучести и повышенным коэффициентом теплового расширения материала оболочки, что приводит к увеличению зазора и, соответственно, к меньшей теплопроводности зазора. Резкое изменение наклона кривых изменения температуры указывает на возникновение МВТО. После контакта разница температур между случаями FeCrAl и Zry-4 вызывается различиями в величине выхода газообразных продуктов деления (который по-прежнему влияет на теплопередачу при контакте при наличии шероховатостей поверхности топлива и оболочки) и теплопроводности оболочки.

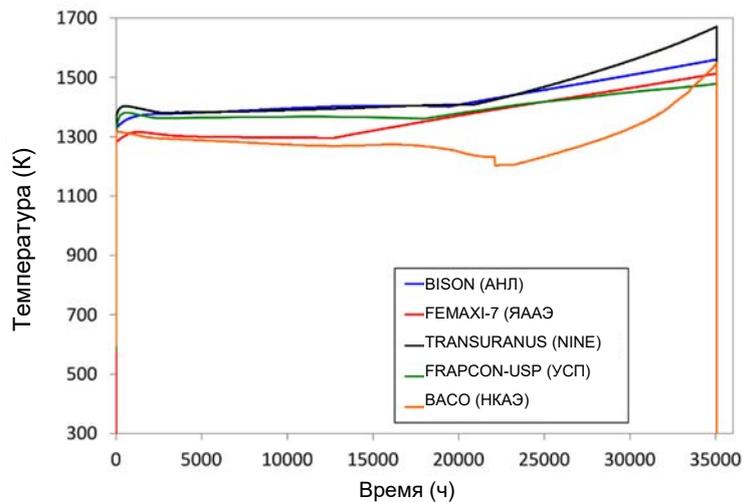


РИС. 162. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов температуры на осевой линии топлива (осевое положение, соответствующее средней плоскости топливного столба) для случая топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

На рис. 163 показаны результаты сравнения расчетов интегрального выхода газообразных продуктов деления с помощью кодов. Различия по сравнению со случаем Zry-4, как ожидается, в первую очередь вызваны отличающимися расчетными температурами топлива. В качественном отношении актуальны те же соображения, что и в случае Zry-4, т.е. все коды прогнозируют инкубационное поведение для ВГПД, хотя и с разными временами инкубации.

Возрастающие различия наблюдаются при глубоком выгорании, которые интерпретируются как связанные с разбросом расчетных температур топлива и с различиями в моделях и параметрах ВГПД. Кроме того, предполагается, что при достижении выгорания, при котором возникает рассматриваемая здесь проблема с топливным стержнем, играет роль учет ВГПД из СГВ. Код TRANSURANUS включает в себя специфические возможности в отношении ВГПД из СГВ, которые были применены в настоящей работе.

Коды BISON и FEMAXI прогнозируют быстрое увеличение (залповый выброс) ВГПД во время окончательного останова, что соответствует экспериментальным наблюдениям, например, данным [162]. Модель газообразных продуктов деления в коде BISON включает специальную функцию расчета залпового выброса [163, 164]. Аналогичная возможность имеется и в коде TRANSURANUS [164], хотя в настоящей работе она не применялась.

На рис. 164 показано изменение во времени внутреннего давления в топливном стержне, прогнозируемое пятью кодами. Как и ожидалось, давление внутри каждого экспериментального стержня возрастает по мере роста времени облучения, и в зазор и газосборную камеру выделяются газообразные продукты деления. Резкий рост внутреннего давления с 2 МПа во время первоначального выхода на мощность обусловлен повышением температуры по сравнению с температурой окружающей среды. Как и в случае с оболочкой из Zry-4, все коды прогнозируют увеличение внутреннего давления в топливном стержне по мере роста времени облучения. Предполагается, что различия будут связаны с различиями в прогнозируемом ВГПД и с различными подходами, используемыми для расчета температуры в газосборной камере. В частности, расчет температуры в газосборной камере был определен как открытый вопрос для точного прогнозирования внутреннего давления в топливном стержне, в том числе во время постулированных LOCA [109].

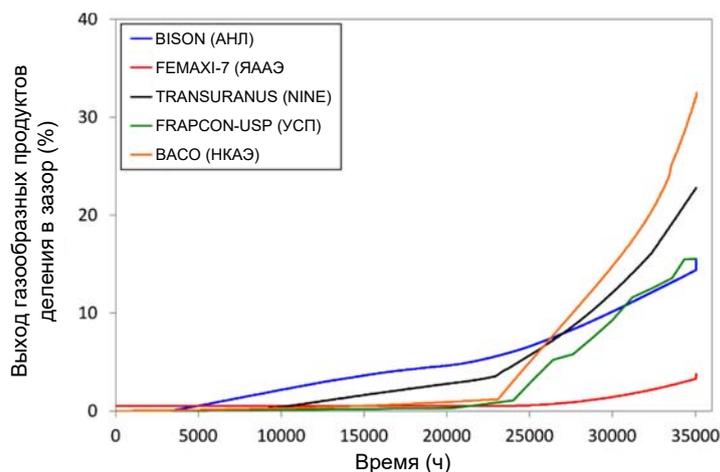


Рис. 163. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов интегрального выхода газообразных продуктов деления для случая топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

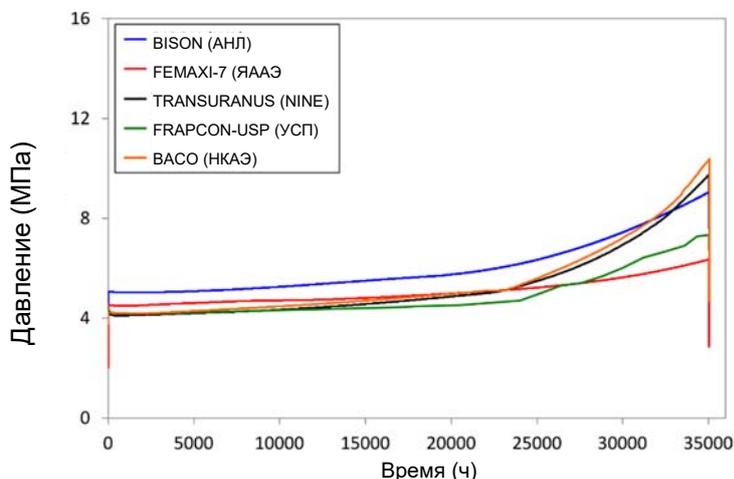


Рис. 164. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов внутреннего давления для случая топливного стержня с оболочкой из FeCrAl при нормальной эксплуатации.

5.5. РЕЗУЛЬТАТЫ СРАВНИТЕЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ДЛЯ УСЛОВИЙ АВАРИИ С ПОТЕРЕЙ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ

Случаи LOCA, рассмотренные для моделирования, описаны в разделе 5.2.2. В общей сложности результаты сравнительных исследований для условий аварии с потерей теплоносителя представили следующие три организации:

- АНЛ (США), код BISON;
- ЯААЭ совместно с Университетом Васэда (Япония), код FEMAXI-7;
- Компания «NINE» (Италия), код TRANSURANUS.

Для этих случаев LOCA при взаимных сравнениях кодов между собой используются следующие показатели качества:

- время до отказа с разрывом оболочки;
- внутреннее давление при разрыве;
- окружная деформация (на внешней поверхности оболочки и в осевом положении пика) во время разрыва;
- окружная деформация (на внешней поверхности оболочки и в осевом положении пика) в зависимости от времени.

5.5.1. Прогнозы зависимости от времени окружной деформации для FeCrAl

На рис. 165 и 166 показано сравнение рассчитанного изменения во времени максимальной окружной деформации на внешней поверхности оболочки для случаев LOCA № 8 (1000°C) и № 12 (1200°C) (см. раздел 5.2.2).

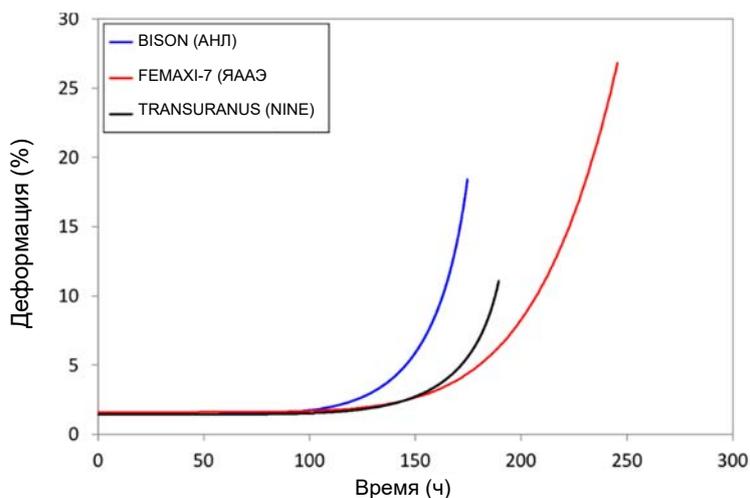


Рис. 165. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов окружной деформации на внешней поверхности оболочки и в осевом положении пика в зависимости от времени для сравнительного исследования случая LOCA № 8.

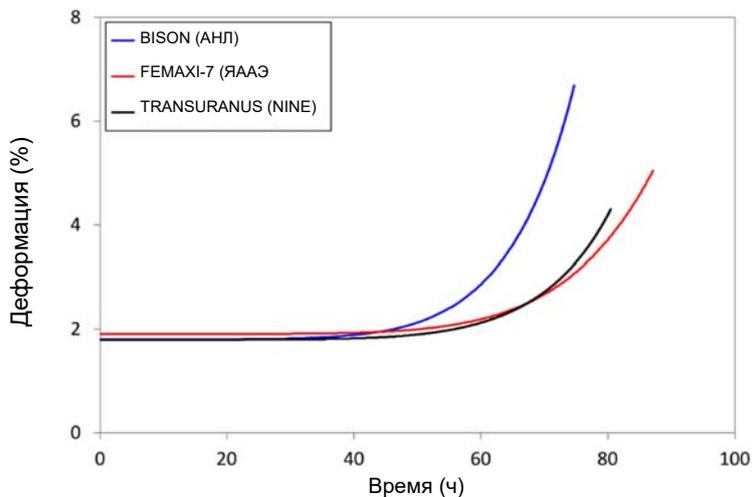


Рис. 166. Сравнение произведенных с помощью кодов расчетов окружной деформации на внешней поверхности оболочки и в осевом положении пика в зависимости от времени для сравнительного исследования случая LOCA № 12.

Первоначальные ненулевые деформации обусловлены тепловым расширением. Все коды прогнозируют увеличение уровня деформации во время переходного процесса (изменения давления) до достижения времени разрыва. Наблюдаемые различия в уровнях деформации могут быть вызваны различными методами трактовки механического поведения в кодах (например, того, каким образом учитывается геометрическая нелинейность или тем, принята ли формулировка большой деформации). Прогнозы кодов TRANSURANUS и FEMAXI выглядят достаточно согласованными, по крайней мере, для деформаций менее 3-5%. Эти случаи типичны для поведения, наблюдаемого в течение всех исследований по моделированию.

5.5.2. Прогнозы отказа с разрывом для FeCrAl и сравнения с циркалом-4

На рис. 167 представлены в виде гистограммы полученные от участников результаты расчета времени до отказа с разрывом для всех шести сравнительных исследований в условиях LOCA. Также включены экспериментальные данные для Zry-4 при тех же условиях (эксперименты PUZRY, см. раздел 5.2.2. и [108]). Случаи выстроены в порядке снижения температуры испытаний. Данных расчетов с использованием кода TRANSURANUS для случая 26 не имеется. Соответствующие прогнозы внутреннего давления в оболочке при разрыве показаны на рис. 168.

Между прогнозами, полученными с использованием различных кодов, наблюдаются некоторые различия. Они могут быть отнесены на счет различий в расчетах деформации (раздел 5.5.1.) и, следовательно, расчетного напряжения, которое определяет прогноз разрыва в соответствии с критерием, описанным в разделе 2.1.5. Однако сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными для Zry-4 показывает, что FeCrAl обладает такой же устойчивостью к разрыву, как и Zry-4. Следует отметить, что эксперименты проводились с толщиной оболочки из Zry-4, равной 725 мкм, что почти в два раза превышает толщину, используемую для расчета оболочки из FeCrAl (385 мкм, исходя из нейтронно-физических соображений, см. раздел 5.2.1.).

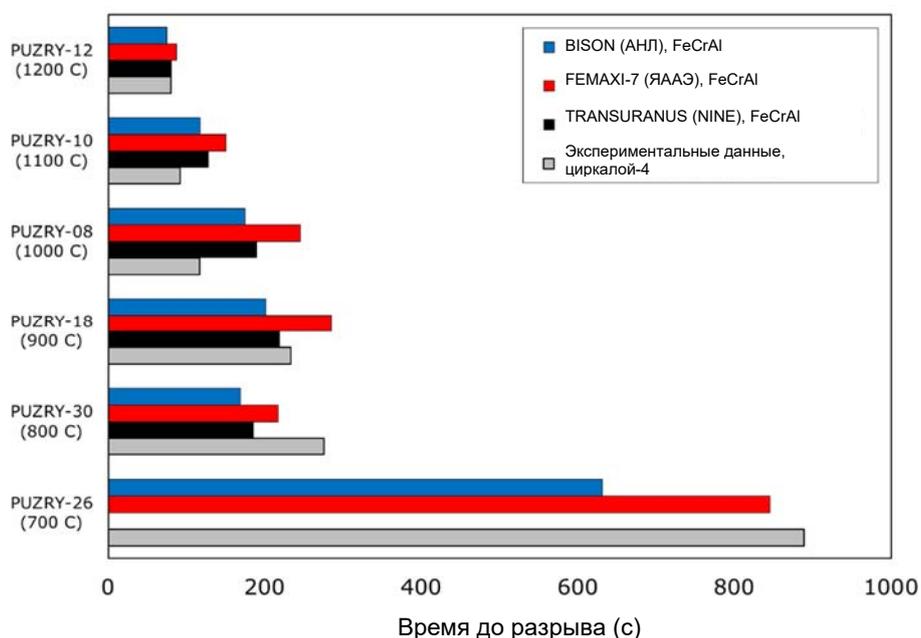


РИС. 167. Время до отказа с разрывом оболочки при сравнительных исследованиях в условиях LOCA. Сравнение расчетов с использованием различных кодов для FeCrAl и экспериментальных данных для циркалоя-4 при тех же условиях.

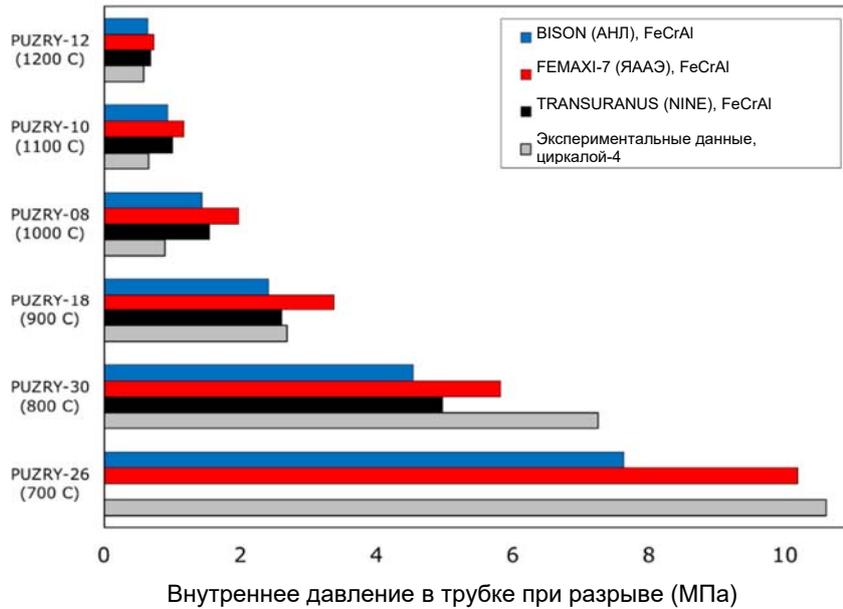


Рис. 168. Внутреннее давление в оболочке при разрыве по данным сравнительных исследований в условиях LOCA. Сравнение расчетов с использованием различных кодов для FeCrAl и экспериментальных данных для циркалой-4 при тех же условиях.

Кроме того, принятый здесь критерий отказа с разрывом был фактически разработан на основе экспериментальных данных для сплавов FeCrAl 1-го поколения [101], а для сплавов 2-го поколения, таких как С35М [99], ожидается еще более высокая устойчивость.

Кроме того, предполагается, что для FeCrAl будет характерна существенно более низкая кинетика окисления и, как следствие, меньшее снижение нагрузочной способности ввиду утончения оболочки и более низкий уровень выделения водорода и тепловыделения в сценариях LOCA. Однако эффект окисления в настоящих расчетах не исследовался.

На рис. 169 показаны полученные участниками результаты в отношении технологического окружного напряжения в осевом положении пика (положении разрыва) на внешней поверхности оболочки в момент отказа с разрывом. Хотя в прогнозах в отношении FeCrAl наблюдаются расхождения, все коды прогнозируют значительно более низкую максимальную деформацию оболочки из FeCrAl по сравнению с экспериментально наблюдаемыми деформациями оболочки из Zry-4. Этот результат согласуется с выводом в [101] о том, что вздутие оболочки из FeCrAl в условиях LOCA очень ограничено, в отличие от оболочек из сплавов на основе Zr.

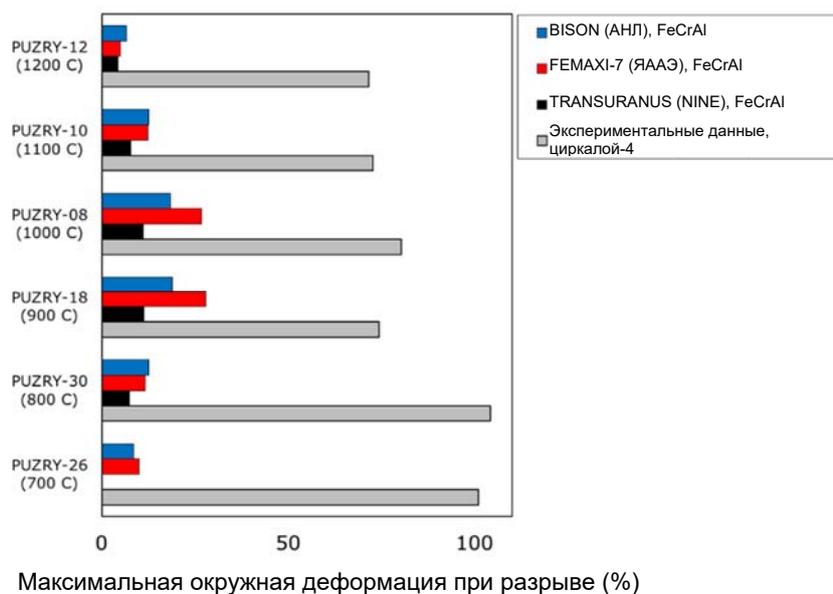


РИС. 169. Максимальная окружная деформация оболочки при разрыве для случаев сравнительных исследований в условиях LOCA. Сравнение расчетов с использованием различных кодов для FeCrAl и экспериментальных данных для циркалой-4 в одинаковых условиях

5.6. ВЫВОДЫ И РЕКОМЕНДАЦИИ

Сравнительные исследования по моделированию, организованные в рамках ПКИ АКТОФ, были посвящены анализу поведения и характеристик оболочки из железо-хром-алюминиевого (FeCrAl) сплава. Оболочка из FeCrAl – это концепция ATF, которая в настоящее время является предметом интереса и активных исследований в различных государствах-членах МАГАТЭ. В сравнительных исследованиях по моделированию для FeCrAl в рамках АКТОФ принимали участие в общей сложности пять организаций: АНЛ (США, код расчета характеристик топлива BISON), компания «NINE» (Италия, код TRANSURANUS), ЯААЭ с университетом Васеда (Япония, код FEMAXI-7), Университет Сан-Паулу (Бразилия, код FRAPCON-USP) и НКАЭ (Аргентина, код BACO). Основное внимание было уделено оптимизированному в лабораторных условиях сплаву FeCrAl C35M, разработанному в ОРНЛ, а свойства материалов и модели были предоставлены от АНЛ участникам для реализации в отдельных кодах. АНЛ также предоставила спецификации для анализируемых случаев сравнительных исследований. Сравнительные исследования по моделированию в рамках АКТОФ привели к обширному сопоставлению результатов расчетов топливных стержней с оболочкой из FeCrAl как в нормальных условиях эксплуатации LWR, так и в условиях аварии с потерей теплоносителя (LOCA).

При расчетах для нормальных условий эксплуатации рассматривался экспериментальный топливный стержень с топливом UO_2 и оболочкой из FeCrAl, облучаемый в стационарном режиме по мощности. Были также выполнены эталонные расчеты для аналогичного случая с оболочкой из стандартного сплава (Zr₂-4). Для расчетов в условиях LOCA были рассмотрены оболочки из FeCrAl, подвергающиеся воздействию переходных процессов по внутреннему давлению. В частности, данные об изменении давления во времени и о значениях температуры, использованные в расчетах, были основаны на экспериментальных условиях отдельных испытаний эффектов PUZRY на вздутие и разрыв сегментов топливных стержней. При проведении этих экспериментальных испытаний внутреннее давление в трубке оболочки линейно и изотермично увеличивалось до тех пор, пока не происходил ее разрыв. Для расчетов в рамках сравнительных исследований было выбрано шесть случаев, соответствующих шести различным температурам испытаний.

Расчеты для FeCrAl в нормальных условиях эксплуатации привели к достаточно согласованным прогнозам от различных кодов, особенно в отношении моделируемого поведения в условиях наличия зазора (т.е. до возникновения МВТО). В частности, результаты расчетов с использованием кодов BISON,

FEMAXI-7 и TRANSURANUS окружного напряжения до возникновения МВТО оказались весьма согласованными.

Сравнения результатов расчетов с использованием кодов BISON, FEMAXI-7 и TRANSURANUS с точки зрения деформаций и напряжений представляются обнадеживающими. Этот вывод следует оценивать с учетом значительных погрешностей моделирования, связанных с анализом топливных стержней, и более широкого разброса результатов, наблюдавшихся в ходе предыдущих сравнительных исследований, которые были связаны с более сложными проблемами топливных стержней (например, ПКИ ФУМЭКС-III), в отношении которых известно, что прогнозы от различных кодов расчета характеристик топлива могут значительно различаться. Действительно, для целей будущей работы согласованность результатов применения различных кодов для этого относительно простого стационарного случая, по-видимому, является подходящей отправной точкой для дальнейших сравнительных расчетов, возможно, связанных с более сложными случаями.

Прогнозируемые различными кодами моменты времени возникновения МВТО существенно различались. Это обстоятельство может быть отнесено на счет различных моделей, примененных в кодах для вкладов в деформацию топлива, что приводит к различным прогнозам с точки зрения кинетики смыкания зазора. Несмотря на наблюдаемые различия в прогнозах от разных кодов, в целом расчеты воспроизводили i) более низкую скорость ползучести для FeCrAl по сравнению с Zry-4, что приводило к задержке смыкания зазора, и ii) более высокое напряжение сжатия в условиях наличия зазора для оболочки из FeCrAl вследствие меньшей толщины стенки оболочки и меньшей скорости ползучести по сравнению с Zry-4. Однако для всех расчетов прогнозируемые напряжения в оболочке FeCrAl были сопоставимы с расчетными для Zry-4 и были значительно ниже предела текучести и предела прочности на растяжение материала в течение всего времени облучения. Расчетные деформации в оболочке из FeCrAl были сопоставимы или ниже, чем в оболочке из Zry-4.

Разница в рассчитанных по разным кодам значениях температуры на осевой линии топлива при глубоком выгорании была до ~100 К и выше. На ранних стадиях облучения температура на осевой линии топлива в стержне с оболочкой из FeCrAl имеет тенденцию быть выше по сравнению с экспериментально наблюдаемым поведением в случае Zry-4 вследствие меньшего обусловленного ползучестью сжатия и более высокого коэффициента теплового расширения материала оболочки, что приводит к большей ширине зазора и связанной с этим меньшей теплопроводности зазора.

Результаты расчетов окисления показали, что толщина слоя оксида (до 5 мкм), образующегося на оболочке из FeCrAl, значительно меньше, чем в случае оболочки из Zry-4 (несколько десятков микрон по расчетам с использованием всех кодов). Это ожидаемо и является основным преимуществом FeCrAl для применения в качестве оболочки ядерного топлива.

Расчеты выхода газообразных продуктов деления и внутреннего давления в стержне выявили значительные различия между результатами применения различных кодов. Предполагается, что для ВГПД это связано с различными применяемыми моделями и параметрами, а также различиями в расчетных температурах топлива. Для расчетов давления в газосборной камере, в дополнение к эффекту ВГПД, ожидается значительное влияние подходов, используемых в кодах для расчета температуры в газосборной камере, также основанных на выводах ПКИ ФУМАК.

Расчеты для случаев LOCA выполнялись с использованием только кодов BISON, TRANSURANUS и FEMAXI-7. Результаты в отношении поведения деформации оболочки при переходных процессах были качественно согласованными, хотя наблюдались значительные различия в прогнозируемых значениях скорости ползучести и времени до отказа с разрывом. Однако в целом расчеты показали, что оболочка из FeCrAl характеризуется такой же устойчивостью к отказу с разрывом, как и оболочка из Zry-4, несмотря на рассматриваемую для FeCrAl с учетом нейтронно-физических аспектов меньшую толщину оболочки. Этот вывод основан на значениях времени разрыва и давления, рассчитанных с использованием трех кодов расчета характеристик топлива (BISON, TRANSURANUS, FEMAXI-7), по сравнению с экспериментально наблюдаемым поведением Zry-4 при тех же условиях. Более того, в то время как в настоящих расчетах использовался критерий отказа с разрывом, основанный на данных по более ранним сплавам FeCrAl, для более совершенных сплавов, таких как C35M, ожидается более высокая устойчивость. И наконец, максимальные значения окружной деформации при разрыве для оболочки из FeCrAl, рассчитанные с использованием всех кодов, были значительно ниже, чем деформации, наблюдаемые экспериментально для оболочек из Zry-4. Это согласуется с более низкой скоростью ползучести FeCrAl по сравнению с циркалоем и с имеющимися данными экспериментальных наблюдений, которые показали, что в условиях

переходных процессов LOCA в оболочках из FeCrAl не происходит значительного вздутия вплоть до момента разрыва.

В заключение, в результате проведенных в рамках ПКИ АКТОФ сравнительных исследований по моделированию различные коды расчета характеристик топлива от государств-членов МАГАТЭ, широко используемые научно-исследовательскими учреждениями и промышленностью, были i) расширены, обеспечивая анализ оболочки из FeCrAl, ii) применены для моделирования комплексных проблем топливных стержней и отдельных проблем, связанных с оболочкой, в условиях нормальной эксплуатации LWR и аварии с потерей теплоносителя, соответственно, и iii) подвергнуты систематическому взаимному сравнению при выполнении этих расчетов. Полученные результаты предоставили ценную информацию о характеристиках оболочки из FeCrAl по сравнению с традиционными сплавами для оболочки. Кроме того, на основе результатов этой работы были определены некоторые важные области будущих исследований. В частности, на основе сравнительного исследования по моделированию для FeCrAl получены следующие основные рекомендации относительно будущих исследований по применению оболочки из FeCrAl:

- будущие сравнительные исследования должны быть направлены на изучение поведения оболочки из FeCrAl в более широком спектре условий, таких как реалистичное базовое облучение в LWR и условиях LOCA, включающие поведение топливных стержней в температурных переходных режимах, окисление и интегральное поведение топливных стержней;
- учитывая ограниченный объем и распространенность имеющихся данных о высокотемпературной ползучести, а также наблюдаемую чувствительность прогнозов в отношении отказов с разрывом к расчетным скоростям ползучести, с целью улучшения моделирования в аварийных условиях рекомендуется провести дальнейшее экспериментальное исследование поведения ползучести FeCrAl при температурах выше нормальных рабочих температур;
- с целью расширения сферы применения моделей окисления на аварийные условия было бы полезно провести экспериментальное исследование поведения FeCrAl при окислении в атмосфере водяного пара при высокой температуре;
- будущие улучшения моделей коррозии должны также включать анализ, помимо роста оксидного слоя, растворения металла;
- для включения в расчеты эффектов радиационного охрупчивания FeCrAl необходимы данные.

В качестве более общей рекомендации по дальнейшей разработке кодов расчета характеристик топлива рекомендуется исследовать поведение деформации топлива под воздействием на оболочку внешних ограничений во время МВТО. В частности, это будет включать в себя вклады в деформацию топлива, зависящие от напряжения (ползучесть, набухание), а также представление растрескивания топлива, влияющее на рассчитанные значения напряжения топлива. Эта рекомендация мотивирована значительными различиями, наблюдаемыми в расчетах механического поведения оболочки после смыкания зазора.

6. СРАВНИТЕЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ДАННЫХ ИСПЫТАНИЯ ПУЧКА ТВЭЛОВ QUENCH-19 С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ КОДОВ ATHLET-CD И СОКРАТ

6.1. ВВЕДЕНИЕ

Железо-хром-алюминиевые (FeCrAl) сплавы относятся к классу сплавов, которые обычно используются на промышленных предприятиях, где требуется стойкость к высокотемпературному окислению. В качестве примеров можно упомянуть следующие сплавы компании «Кантал»: АРМ (73% Fe, 21,2% Cr, 5,8% Al) и АРМТ (70% Fe, 21% Cr, 5% Al, 3% Mo). Авария в результате отказа электроснабжения на станции, произошедшая в марте 2011 года на атомной электростанции «Фукусима дайити», послужила катализатором недавнего значительного увеличения интереса к сплавам FeCrAl для применений в атомной энергетике. Эта авария побудила к проведению значительных исследований, посвященных поиску систем толерантного топлива LWR, допускающих сценарии тяжелых аварий (или запроектных аварий, ЗПА). Цель заключается в обеспечении больших запасов безопасности, т.е. задержке начала тяжелого повреждения активной зоны путем уменьшения выделения водорода и тепла, образующегося при быстром окислении оболочки на основе Zr сплава, и увеличения времени сохранения устойчивости после аварии.

С целью замены сплавов на основе Zr была начата разработка обладающих повышенной устойчивостью к авариям деформируемых сплавов FeCrAl на основе железа для оболочки топлива LWR. Наиболее систематические усилия были направлены на разработку сплавов FeCrAl, которые должны рассматриваться как сплавы *ядерного класса*, т.е. должны иметь оптимизированный состав материала для работы как в условиях нормальной эксплуатации, так и в аварийных условиях. В частности, содержание хрома не должно превышать 13%, с тем чтобы снизить радиационное упрочнение. Многие из этих исследований деформируемого сплава FeCrAl связаны с композициями, разработанными Окриджской национальной лабораторией (ОРНЛ), включая два разных поколения сплавов. Сплавы I поколения — это простые системы, в которых для формирования сплава используются только Fe, Cr, Al и Y, в то время как сплавы II поколения получены из сплавов I поколения, но включают незначительные легирующие добавки для повышения конкретных показателей работоспособности. Во-первых, в ОРНЛ было подробно изучено окислительное поведение материалов компании «Кантал» («Kanthal»), которые не могут быть использованы в реакторах ввиду слишком высокого содержания Cr [165–167]. В отличие от них, сплав В136У (13% Cr, 6,2% Al, 0,03% Y, остальное Fe), разработанный ОРНЛ, может считаться подходящим для ядерных применений [168–171]. С целью изучения различных свойств этого материала в различных лабораториях были проведены серии испытаний на единичный эффект. Однако такие испытания проводятся в упрощенных лабораторных условиях (например, [169, 170]) и на самом деле не являются прототипными для условий в реакторе.

Только испытания пучков твэлов могут обеспечивать более реалистичные адиабатические условия. Преимущества испытаний пучков твэлов можно описать следующим образом: радиационный теплообмен между топливными стержнями, изменение канала теплоносителя при распухании оболочки, взаимодействия материалов после отказов топливных стержней, влияние дистанционирующих решеток. Данные испытаний пучков твэлов обеспечивают важную основу для валидации кодов. С учетом этих соображений было решено провести испытание пучков твэлов с оболочками из В136У на установке QUENCH Технологического института Карлсруэ (ТИК). Эксперимент по испытанию пучков твэлов с оболочками из В136У и 4 дистанционирующими решетками Kanthal AF, а также 7 угловыми стержнями из KANTHAL АРМ и кожухом из KANTHAL АРМ был проведен в ТИК 29 августа 2018 [172] года. Целью испытания было сравнение оболочек из В136У и ZIRLO в аналогичных условиях электрической мощности и расхода газа. На первых двух этапах (предварительное окисление и переходные процессы) мощность была такой же, как и при эталонном испытании QUENCH-15 (ZIRLO). Третий этап с постоянной электрической мощностью был выполнен с целью продления периода повышения температуры. Этот искусственный подход привел к не прототипическому снижению скорости роста температуры, но такой подход позволил наблюдать изменение эволюции выделения водорода в режиме «замедленного движения». Испытание было прекращено при пиковой температуре оболочки около 1460°C путем заливания водой, аналогично испытанию QUENCH-15. Результаты испытаний описаны в соответствующей главе приложения. Здесь можно отметить, что общий выход водорода был значительно

ниже по сравнению с испытанием QUENCH-15 (9 г по сравнению с 41 г). Однако имели место проблемы с целостностью трубок оболочки из FeCrAl: в наиболее горячих точках пучка твэлов происходило выкрашивание цилиндрических частей трубок длиной до 20 мм. Причины этих явлений по-прежнему изучаются, но, вероятно, они вызваны иницированием трещин расплавленными термопарами и более высоким коэффициентом теплового расширения FeCrAl по сравнению с сплавами Zr.

Результаты испытаний пучков твэлов QUENCH-19 были использованы для проведения сравнительного исследования после испытаний. Результаты первых исследований по моделированию испытаний пучков твэлов с использованием материалов FeCrAl (подробные описания соответствующего моделирования приведены в приложении) представили две организации:

- GRS (Германия), код ATHLET-CD [173];
- ИБРАЭ (Российская Федерация), код СОКРАТ [174].

В обоих кодах пучок стержней была описан тремя концентрическими кольцами, как показано на рис 170 и в таблице 46: внутренним кольцом (ROD1), содержащим четыре центральных стержня, вторым кольцом, содержащим восемь стержней (ROD2), и третьим кольцом, содержащим двенадцать стержней (ROD3).

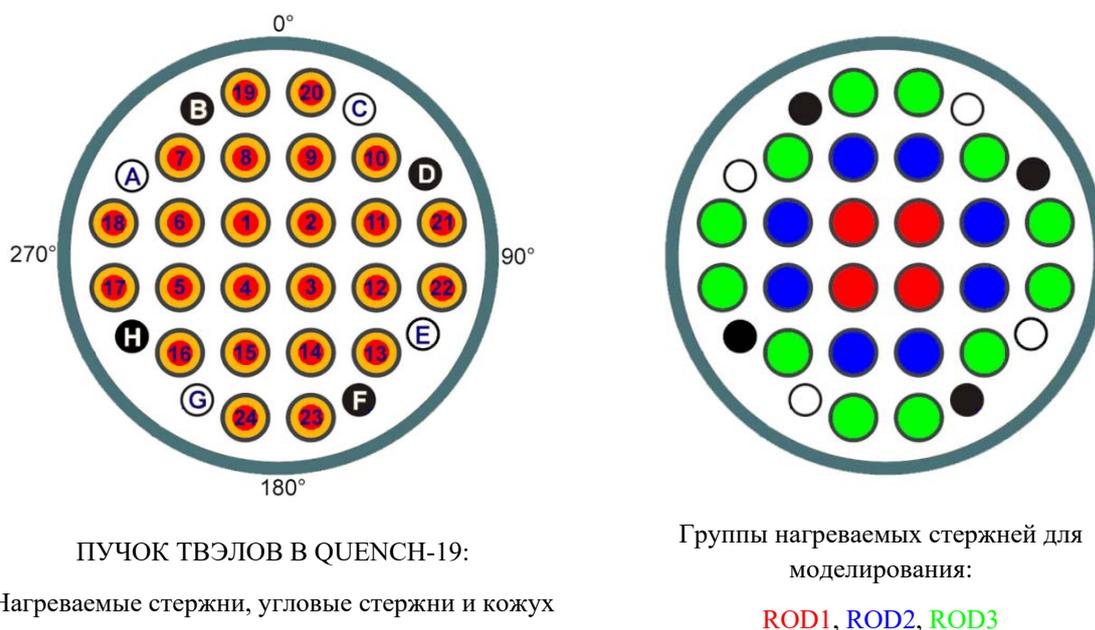


РИС. 170. Конфигурация пучка твэлов в QUENCH-19.

ТАБЛИЦА 46. ГРУППЫ НАГРЕВАЕМЫХ СТЕРЖНЕЙ ДЛЯ МОДЕЛИРОВАНИЯ В QUENCH-19

Группа стержней в коде	Конфигурация	Номер стержня
ROD1	4 центральных стержня	1, 2, 3, 4
ROD2	8 стержней (промежуточное кольцо)	5, 6, 8, 9, 11, 12, 14, 15
ROD3	12 стержней (внешнее кольцо)	7, 10, 13, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24

Граничные условия, используемые для расчетов, приведены в описании испытания (см. приложение). Была установлена эталонная точка отсчета времени (0 с) для начала эксперимента. эталонная высота пучка твэлов (0 мм) соответствовала нижней части вольфрамowych нагревателей в имитаторе стержня.

6.2. ТЕМПЕРАТУРНАЯ ИСТОРИЯ ИСПЫТАНИЯ QUENCH-19 ДЛЯ РАЗЛИЧНЫХ ОТМЕТОК ВЫСОТЫ В ПУЧКЕ ТВЭЛОВ

На рис. 171–176 показаны расчетные распределения температуры на отметках высоты от 250 до 1350 мм по сравнению с экспериментальными данными.

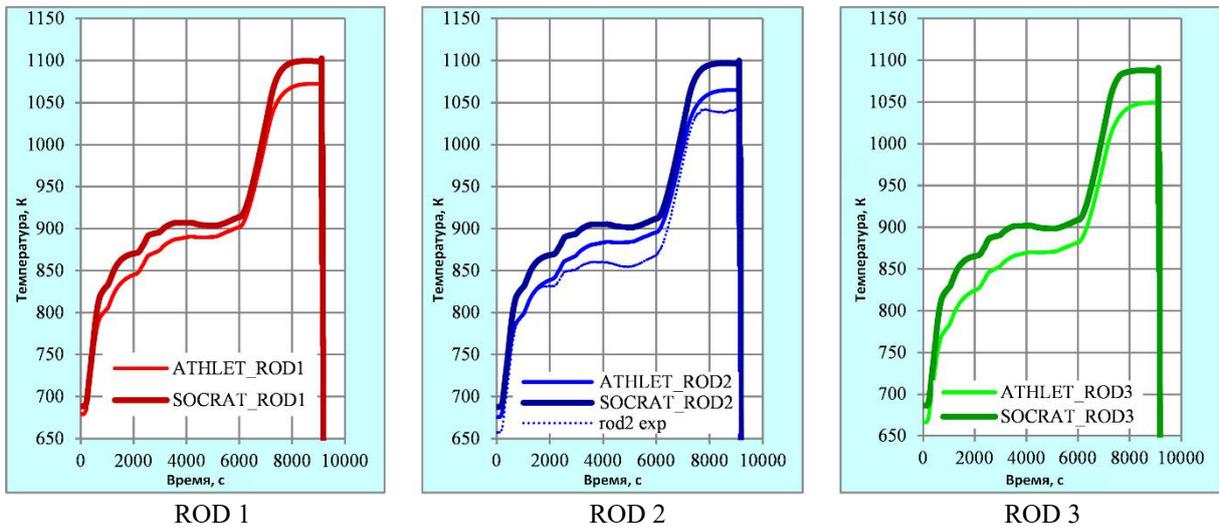


РИС. 171. Моделирование изменения температуры во времени на отметке высоты 250 мм с использованием кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

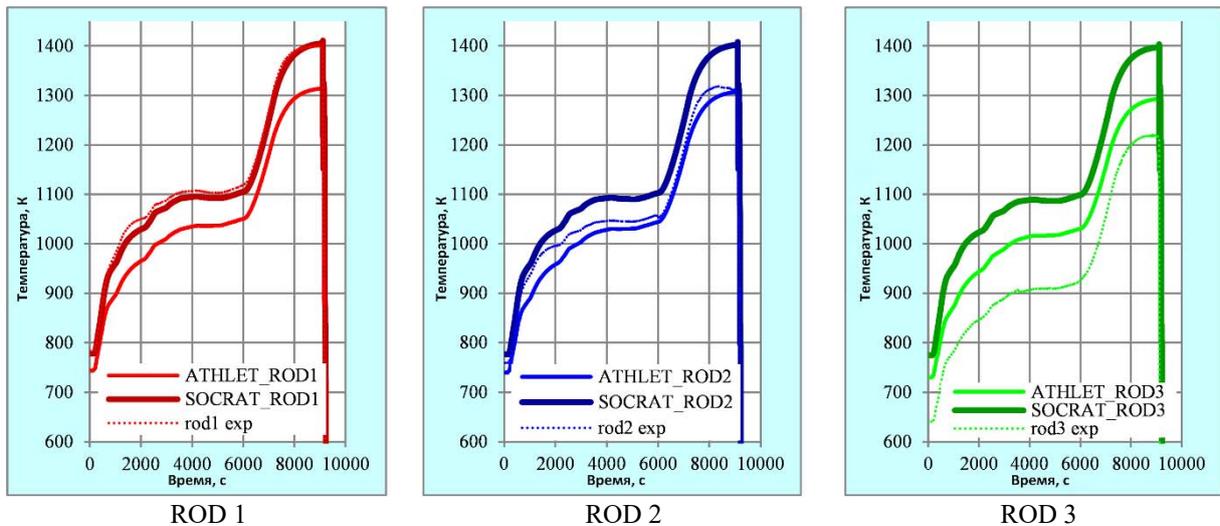


РИС. 172. Моделирование изменения температуры во времени на отметке высоты 550 мм с использованием кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

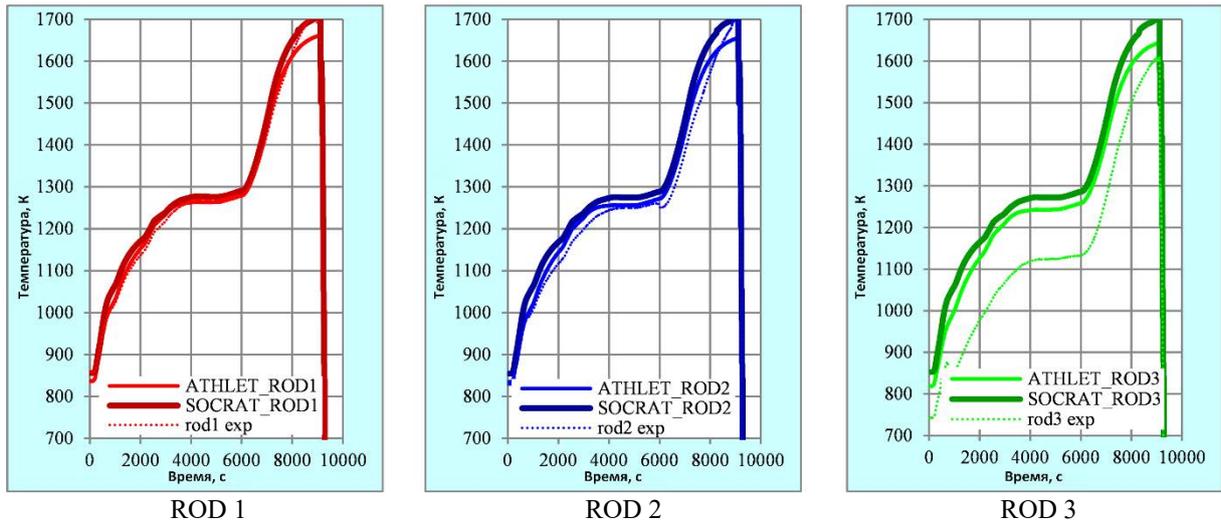


РИС. 173. Моделирование изменения температуры во времени на отметке высоты 850 мм с использованием кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

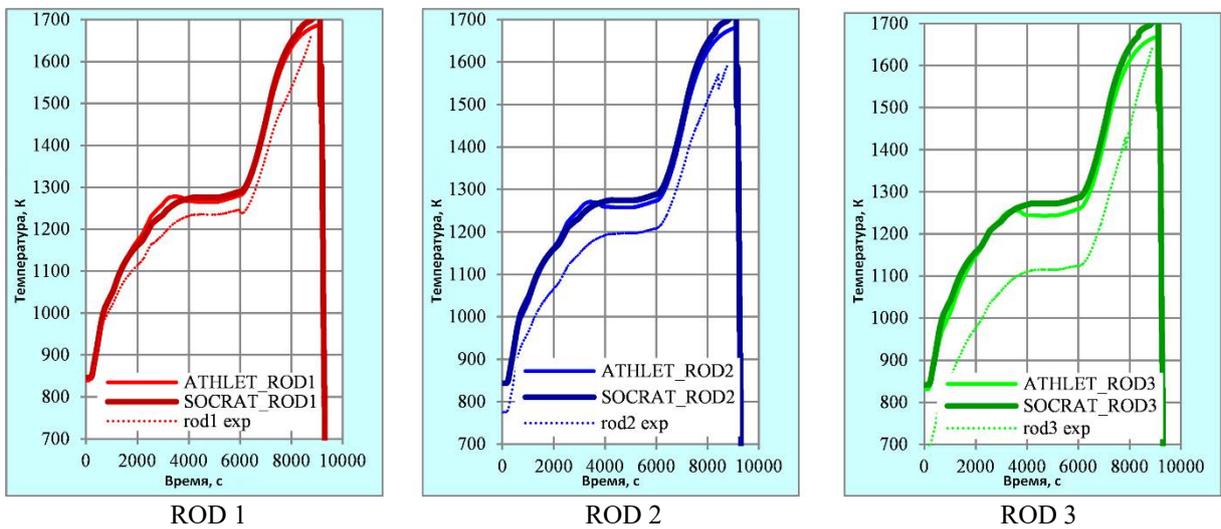


РИС. 174. Моделирование изменения температуры во времени на отметке высоты 950 мм с использованием кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

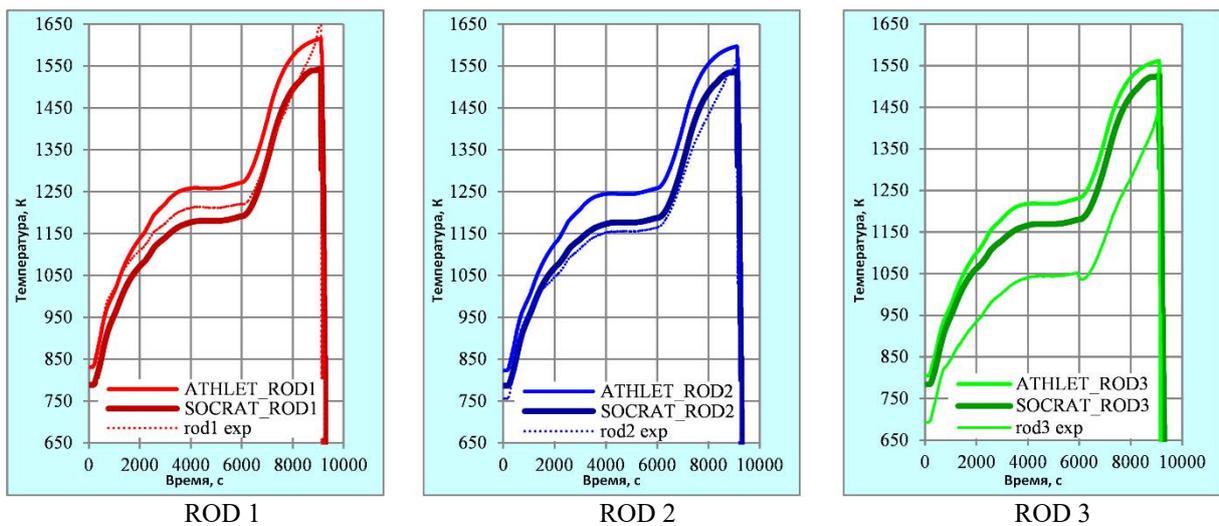


РИС. 175. Моделирование изменения температуры во времени на отметке высоты 1050 мм с использованием кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

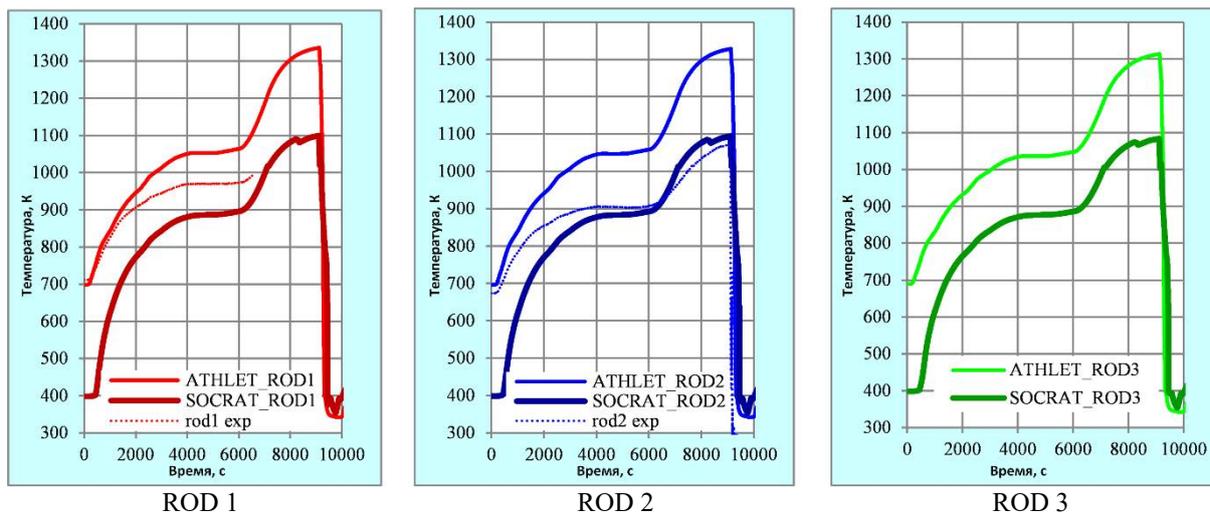


Рис. 176. Моделирование изменения температуры во времени на отметке высоты 1350 мм с использованием кодов ATHLET-CD и СОКРАТ.

Значения температуры в пучке для внутренних стержней (ROD1), промежуточных стержней (ROD2) удовлетворительно воспроизводятся кодами для отметок высоты до 1050 мм, т.е. внутри осевой части пучка, окруженной теплоизоляцией. Для уровня не изолированного пучка на высоте 1350 мм оценки температуры оболочки ROD1 и ROD2 были завышены кодом ATHLET-CD и частично занижены кодом СОКРАТ. Оценка температуры оболочки стержней внешнего кольца ROD3 была завышена обоими кодами. Следует отметить, что в эксперименте существует выраженный радиальный градиент между внутренней и внешней температурами с разницей до 200 К в измеренных данных (заметно больший по сравнению с QUENCH-15; причины этого пока не полностью понятны), тогда как моделирование дает плоский профиль с разницей менее 50 К. Моделирование с использованием кода ATHLET-CD показывает более явно выраженные радиальные градиенты температуры, чем моделирование с использованием кода СОКРАТ.

В соответствии с измерениями в моделировании нет скачка температуры. Температура плавления оболочек из FeCrAl (составляющая около 1783 К) не достигалась ни в эксперименте, ни при моделировании.

6.3. ВЫХОД ВОДОРОДА ПРИ ПРОВЕДЕНИИ QUENCH-19

Расчет выхода водорода был основан на описывающих окисление материала KANTHAL APMT корреляциях, разработанных ТИК для моделей кодов ATHLET-CD, и моделей ИБРАЭ, разработанных на основе экспериментов, проведенных ОРНЛ при температурах от 1323 до 1473 К [165] и от 1473 до 1750 К [166]. На основе этих двух наборов данных [167] общая кинетика окисления APMT в области температур от 1323 до 1750 К была описана ОРНЛ со следующим коэффициентом Аррениуса для привеса массы [168]:

$$K_1 = A_1 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad (50)$$

где энергия активации $E_a = 344$ кДж/моль и предэкспоненциальный множитель $A_1 = 7,84$ г²/см⁴с, а R — это газовая постоянная.

К сожалению, в настоящее время нет данных по высокотемпературному окислению сплава KANTHAL APMT (использованного для кожуха и угловых стержней в QUENCH-19).

Что касается сплава В136УЗ (используемого в оболочках), то имеются лишь незначительные экспериментальные данные. Первый набор таких данных для условий переходного режима был получен в ОРНЛ [169]. При моделировании этих испытаний предполагаемая энергия активации составляла 344 кДж, то есть была такой же, как для сплава APMT; по сравнению с данными для сплава APMT изменялся в 3-10 раз только предэкспоненциальный множитель. Вторая серия испытаний в квазиизотермических

условиях в данном температурном диапазоне была проведена в МТИ, и были опубликованы следующие корреляции для В136УЗ [170]:

$$K_2 = \begin{cases} 9,62 \times 10^{-12} [\text{г}^2/\text{см}^4\text{с}], & T \leq 1473 \text{ К} \\ A_2 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) & , 1473 < T < 1648 \text{ К} \end{cases} \quad (51)$$

где энергия активации $E_a=344$ кДж/моль, а предэкспоненциальный множитель $A_2=15,18$ г²/см⁴·с.

Однако такая аппроксимация экспериментальных данных с применением той же энергии активации, что и для материала АРМТ (содержащего только 5,0% Al и 21% Сг по сравнению с 6,2% Al и 13% Сг в случае В136У) явно занижает степень окисления экспериментальных образцов при $T>1550$ К. Подгонка экспериментальных данных МТИ с довольно высоким коэффициентом детерминированности ($R^2=0,94$) дает следующую корреляцию окисления для В136У:

$$K_3 = A_3 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad , 1473 < T < 1648 \text{ К} \quad (52)$$

где энергия активации $E_a=594,354$ кДж/моль и предэкспоненциальный множитель $A_3=3 \times 10^9$ г²/см⁴·с, а R – это газовая постоянная.

По экспериментальным данным, при $T > 1648$ К произошло значительное ускорение окисления. Вероятно, защитный слой Al_2O_3 исчез либо вследствие испарения $\text{Al}(\text{OH})_3$ [171], либо ввиду растворения в металлической матрице. Эта температурная граница зависит от экспериментальных условий, поскольку практически все испытания показали, что на поведение при окислении оказывала влияние скорость потока пара.

Для первой версии сравнительных расчетов использовалась корреляция окисления сплава АРМТ. В коде ATHLET-CD для всего диапазона температур испытания использовался множитель 300. При моделировании с использованием кода СОКРАТ эта корреляция использовалась до 1723 К, а впоследствии для плавного перехода к окислению расплава была реализована специальная промежуточная корреляция до 1723 К. Окисление расплава было моделировано с использованием корреляции для окисления стали выше 1773 К, согласно данным [169].

Соответствующее сравнение данных эксперимента и моделирования для скорости образования водорода и общей массы образовавшегося водорода (рисунок 177 и рисунок 178) показывает сильно заниженную оценку окисления при моделировании.

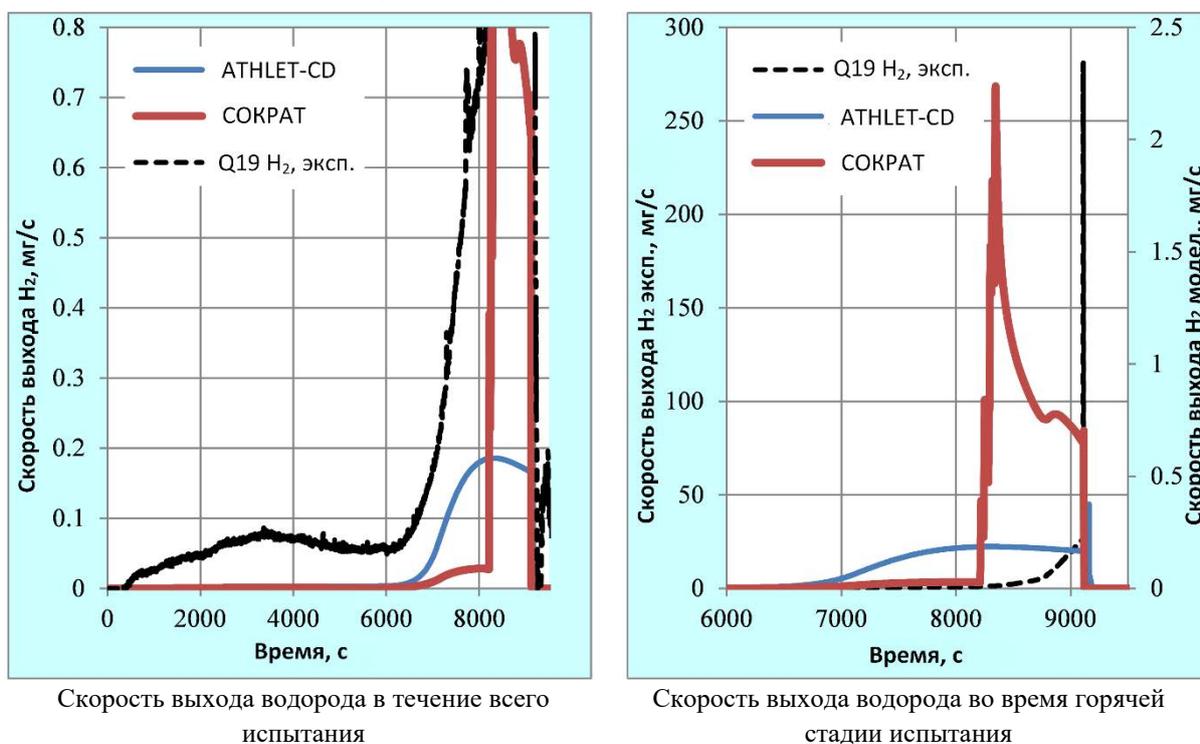


РИС. 177. Моделирование (с использованием корреляции для АРМТ) и экспериментальные данные по скорости выхода водорода в QUENCH-19.

Образование водорода в ходе испытания было сравнительно низким до того момента, когда рассчитанные максимальные температуры оболочки достигали уровня около 1670 К за приблизительно 800 с до повторного залива (начало повторного залива: 9116 с). Соответствующее измеренное значение примерно на 100 К ниже, так как поверхностная ТП измеряла промежуточное значение между температурой поверхности оболочки и температурой пара. Наблюдалось резкое увеличение скорости выхода водорода, что, вероятно, связано с расплавлением стальных оболочек термопар и частичным растворением оболочки этим расплавом. Эти явления не были учтены в моделях.

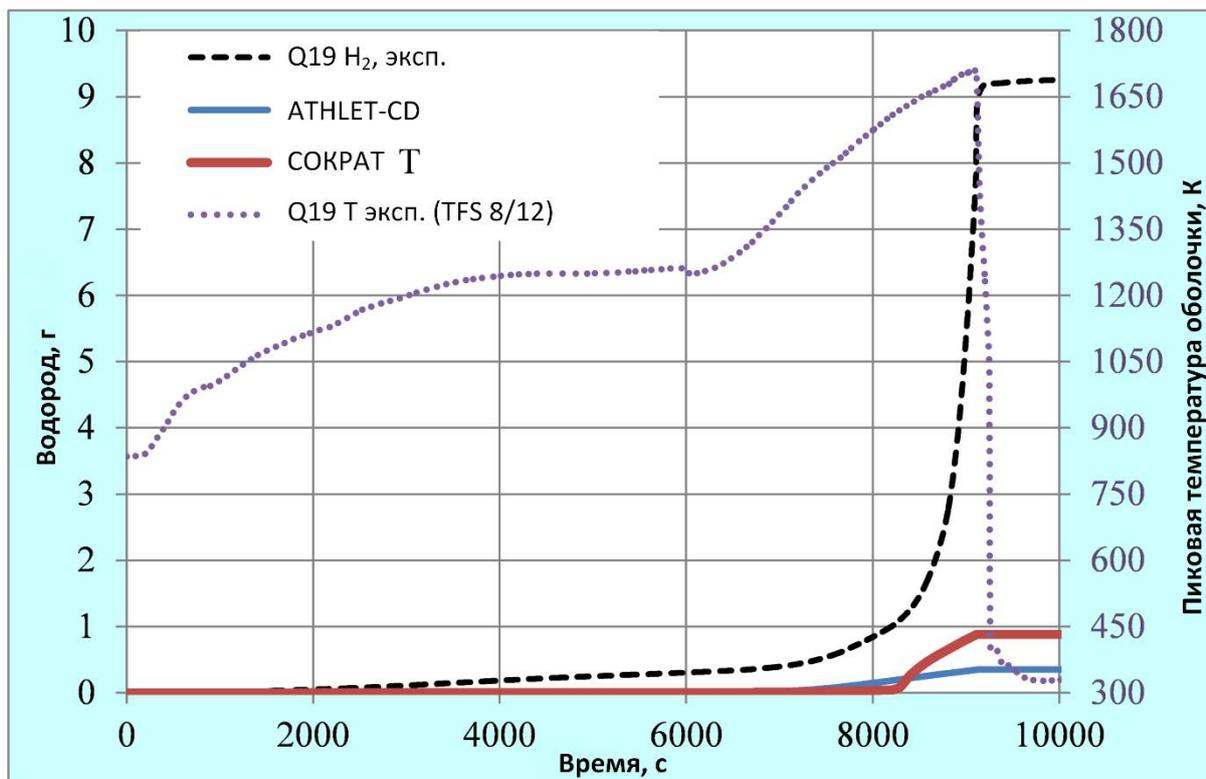


РИС. 178. Суммарный выход водорода во время испытания QUENCH-19: сравнение данных моделирования (APMT) с экспериментом.

Во второй версии моделирования, основанной на данных МТИ для сплава В136У, GRS применила уравнения (51) и (52), в которых зависимость (52) использовалась до самой высокой пиковой температуры оболочки, достигаемой во время испытания QUENCH-19 ($T_{\text{pct}}=1733$ К). В результате этого образование водорода при моделировании значительно ниже измеренного уровня (0,07 г при моделировании по сравнению с 9 г при измерении).

В этой второй серии расчетов в ИБРАЭ использовали зависимость (52) в температурном диапазоне $T \leq 1623$ К.

При температурах выше 1723 К (на 50 К ниже температуры плавления FeCrAl) для применения в коде СОКРАТ использовалась следующая (модифицированная) корреляция (выведенная раньше для окисления нержавеющей стали [169]):

$$K_4 = A_4 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad , \quad T > 1723 \text{ К} \quad (53)$$

где энергия активации $E_a=352513$ Дж/моль и предэкспоненциальный множитель $A_4=4,57 \times 10^7 \text{ г}^2/\text{см}^4\text{с}$, а R — это газовая постоянная.

В температурном диапазоне $1623 \text{ К} \leq T \leq 1723 \text{ К}$ для получения переходной корреляции формулы Аррениуса (53) между формулами (52) и (53) в ИБРАЭ использовались экспериментальные данные МТИ.

Результаты соответствующих расчетов выхода водорода с использованием кода СОКРАТ приведены на рис. 179. Можно видеть, что оценка рассчитанного выхода водорода для корреляции МПТ также занижена, даже при более низких температурах. Что касается общего выхода водорода, то анализ

неопределенностей показал, что результат весьма чувствителен к температуре в горячей зоне пучка: повышение температуры всего на 20 К здесь дает увеличение общей массы водорода до 12 г.

Для детальной оценки рассчитанного образования водорода необходимо использовать окончательные результаты обследования пучка после испытаний. Кроме того, необходимо обновить данные кинетики окисления для материала оболочки В136У3 от ОРНЛ, который является тем материалом оболочки, который выбран для пучка твэлов в QUENCH-19.

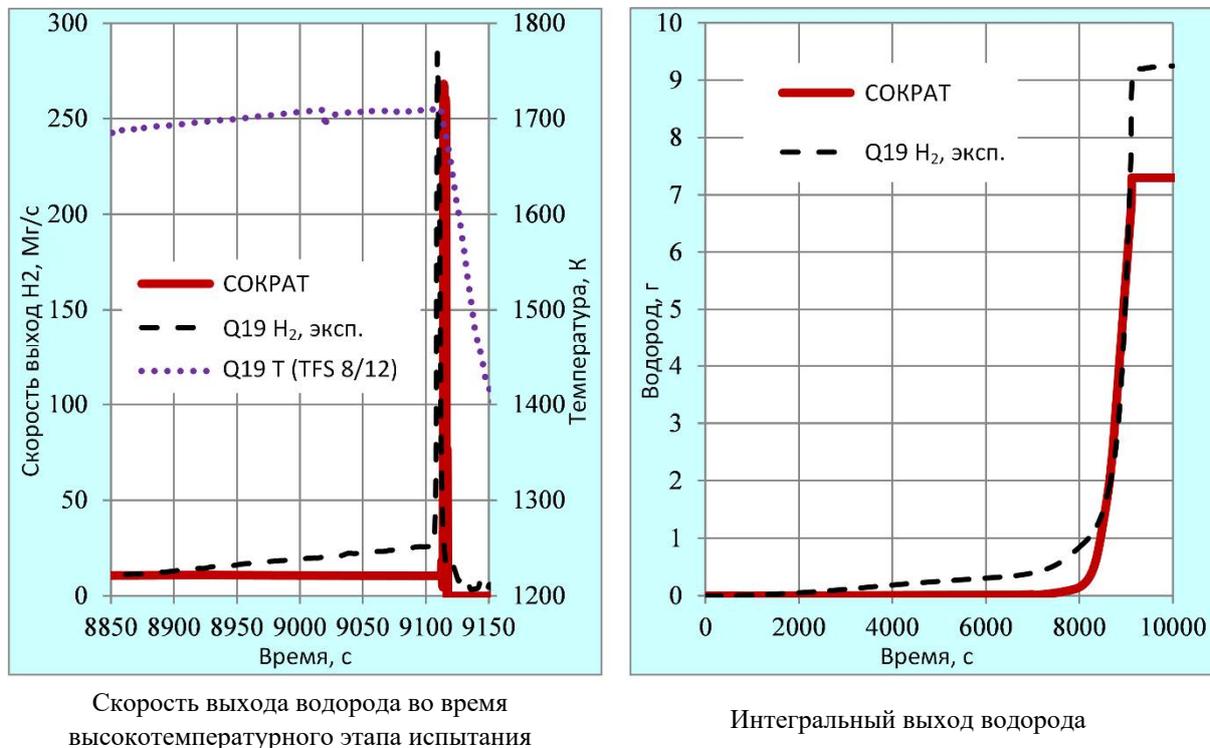


Рис. 179. Моделирование (с корреляцией МТИ) и экспериментальные данные о выходе водорода при испытании QUENCH-19.

6.4. ВЫВОДЫ

Первое испытание пучка твэлов, проведенное с использованием трубок с оболочкой из FeCrAl в условиях тяжелой аварии, показало значительное снижение выхода водорода по сравнению с испытаниями пучка твэлов с использованием сплавов Zr. Однако многие трубки в горячей зоне пучка были повреждены и от них отделились небольшие трубчатые сегменты. Это явление деградации, вероятно, является следствием растрескивания, вызванного расплавленными термопарами под воздействием осевых напряжений и более высоким коэффициентом теплового расширения сплавов FeCrAl по сравнению с Zr. Можно сделать качественный вывод, что FeCrAl показывает более длительное время сохранения устойчивости в QUENCH-19 по сравнению с эталонным испытанием QUENCH-15. Количественные оценки для условий в реакторе следует проводить с осторожностью ввиду искусственного продления переходного режима перед повторным заливом.

Моделирование после испытаний проводилось с использованием двух системных кодов — ATHLET-CD и СОКРАТ. Оба кода достаточно хорошо описывали теплогидравлическое поведение пучка твэлов. Расчетные температуры симуляторов внутренних топливных стержней хорошо согласуются с результатами испытаний. С другой стороны, наблюдается заметная завышенная оценка температур оболочки для внешних стержней. Однако радиальный градиент температуры в этом испытании был значительно выше, чем в ранее проведенных испытаниях пучка твэлов со сплавами Zr, и это еще не полностью понятно.

Вторым смоделированным явлением было окисление материалов пучка твэлов из FeCrAl в атмосфере водяного пара. Имеющаяся в настоящее время модель кинетики окисления FeCrAl приводила к сильно заниженной оценке скорости выхода водорода во время всего испытания, особенно при высоких

температурах перед началом повторного залива. Использование при моделировании немногочисленных экспериментальных данных SET (испытаний по определению влияния отдельных эффектов), полученных для температур, близких к точке плавления FeCrAl, показало удовлетворительные результаты в отношении общего выхода водорода. Для получения кинетики окисления различных сплавов FeCrAl требуется проведение дополнительных испытаний на одиночный эффект при высокой температуре. Кроме того, для сравнительных исследований, калибровки и верификации кодов для тяжелых аварий были бы полезны дальнейшие испытания пучков твэлов с FeCrAl материалами.

ВЫВОДЫ И БУДУЩАЯ РАБОТА

Работы по проведению координированных исследований в рамках ПКИ МАГАТЭ по анализу вариантов и экспериментальному исследованию топлива водоохлаждаемых реакторов с повышенной устойчивостью к авариям были в целом успешно выполнены. В ходе круговых автоклавных испытаний оболочки с покрытием было установлено, что Cr покрытие эффективно предотвращает окисление циркониевой подложки в течение длительного периода воздействия до 150 суток. В будущем необходима оптимизация для других покрытий, таких как MAX-фаза и ZrSi-Cr и нержавеющей сталь марки AISI 348. В целом согласуются данные автоклавных испытаний на коррозию трех различных испытательных лабораторий: Чешского технического университета/UJP Praha (ЧТУ), Технического исследовательского центра Финляндии (VTT) и Польского Национального Института ядерной химии и технологии (ИЯХТ). В ходе испытаний на высокотемпературное окисление в атмосфере водяного пара Cr покрытие также показало лучшую защиту циркониевых подложек. При 1200°C окисления циркониевой подложки обнаружено не было. При более высоких температурах, таких как 1300 и 1350°C, окисление циркониевой подложки и степень окисления зависели от температуры и длительности испытания.

Сравнительные исследования по моделированию оболочки из FeCrAl с обычным UO₂ топливом проводились с использованием пяти различных кодов расчета характеристик топлива от пяти различных организаций. Расчеты, выполненные для нормальных условий эксплуатации, показали хорошую согласованность при прогнозировании механического поведения оболочки, особенно в условиях наличия зазора до возникновения MBTO. Коды BISON, FEMAXI-7 и TRANSURANUS показали хорошую согласованность при моделировании деформаций и напряжений при MBTO. Результаты использования этих кодов для расчета таких параметров поведения топливных таблеток, как температура на осевой линии, выход газообразных продуктов деления и набухание были менее согласованными. Расчеты для условий LOCA, выполненные с использованием кодов BISON, TRANSURANUS и FEMAXI-7, показали, что поведение деформации оболочки в переходных режимах является качественно согласованным. Все расчеты показали, что оболочка из FeCrAl может быть более устойчивой к вздутию и разрыву, чем оболочка из Zry-4.

Первое испытание пучков твэлов в условиях тяжелой аварии QUENCH для оболочки из FeCrAl было проведено в ТИК, а моделирование после испытания было проведено с использованием двух системных кодов ATHLET-CD и СОКРАТ. Оба кода достаточно хорошо описывали теплогидравлическое поведение внутренних стержней с оболочкой из FeCrAl, но давали завышенную оценку температуры оболочки внешних стержней. При использовании имеющейся в настоящее время кинетики окисления FeCrAl модели давали значительно заниженные прогнозы выделения водорода по сравнению с результатами испытаний. Необходимы дополнительные испытания на одиночные эффекты высокотемпературного окисления различных FeCrAl сплавов.

Данный ПКИ обеспечил получение его участниками важных данных. В отношении будущего ПКИ рекомендуется, чтобы группа при дальнейших исследованиях сосредоточила внимание на одном или двух наиболее эффективных покрытиях. В частности, необходимо изучить наводороживание внутри покрытия и механизм переноса водорода через покрытие в подложки. Сравнительные исследования по моделированию могут быть расширены и включать оболочки с покрытием и SiC с акцентом на анализ неопределенностей. Моделирование испытаний QUENCH-19 следует продолжить с участием других кодов расчета в условиях тяжелых аварий, таких как МААР и MELCOR. Для FeCrAl по-прежнему необходимы данные о высокотемпературном окислении. Будущие испытания QUENCH могут быть расширены путем включения в них оболочек с покрытием и оболочек из SiC.

СПРАВОЧНЫЕ МАТЕРИАЛЫ

- [1] TERRANI, K.A., ZINKLE, S.J., SNEAD, L.L., Advanced oxidation-resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding, *Journal of Nuclear Materials* **448** (2014) 420.
- [2] PINT, B.A., TERRANI, K.A., YAMAMOTO, Y., SNEAD, L.L., Material selection for accident tolerant fuel cladding, *Metall. Mater. Trans. E* **2** (2015) 190.
- [3] TERRANI, K.A., PINT, B.A., UNOCIC, K.A., YANG, Y., SILVA C.M., MEYER, H.M., III, REBAK, R.B., Uniform corrosion of FeCrAl alloys in LWR coolant environments, *Journal of Nuclear Materials* **479** (2016) 36.
- [4] STACHOWSKI, R.E., REBAK, R.B., GASSMANN, W.P., WILLIAMS, J., "Progress of GE development of accident tolerant fuel FeCrAl cladding", *Proceedings of TopFuel*, Boise, ID, USA, 2016.
- [5] McMURRAY, J.W., HU, R., USHAKOV, S.V., SHIN, D., PINT, B.A., TERRANI, K.A., NAVROTSKY, A., Solid-liquid phase equilibria of Fe-Cr-Al alloys and spinels, *Journal of Nuclear Materials* **492** (2017) 128.
- [6] GEORGE, N.M., TERRANI, K.A., POWERS, J., WORRALL, A., MALDONADO, I., Neutronic analysis of candidate accident-tolerant cladding concepts in pressurized water reactors, *Annals of Nuclear Energy* **75** (2015) 703.
- [7] HU, X., TERRANI, K.A., WIRTH, B.D., SNEAD, L.L., Hydrogen permeation in FeCrAl alloys for LWR cladding application, *Journal of Nuclear Materials* **461** (2015) 282–291.
- [8] FIELD, K.G., HOWARD, R., YAMAMOTO, Y., Experimental plan and irradiation target design for FeCrAl embrittlement screening tests conducted using the high flux isotope reactor, *Technical Report ORNL/TM-2015/311*, Oak Ridge National Laboratory (2015).
- [9] YAMAMOTO, Y., PINT, B.A., TERRANI, K.A., FIELD, K.G., YANG, Y., SNEAD, L.L., Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors, *Journal of Nuclear Materials* **467** (2015) 703.
- [10] THOMPSON, Z.T., TERRANI, K.A., YAMAMOTO, Y., Elastic Modulus Measurement of ORNL ATF FeCrAl Alloys, *Technical Report ORNL/TM-2015/632*, Oak Ridge National Laboratory (2015).
- [11] TERRANI, K.A., KARLSEN, T.M., YAMAMOTO, Y., Input correlations for irradiation creep of FeCrAl and SiC based on in-pile Halden test results, *Technical Report ORNL/TM-2016/191*, Oak Ridge National Laboratory, (May 2016).
- [12] MASSEY, C.P., TERRANI, K.A., DRYEPONDT, S.N., PINT, B.A., Cladding Burst avior of Fe-based Alloys Under LOCA, *Journal of Nuclear Mats* **470** (2016) 128.
- [13] FIELD, K.G., BARRETT, K., SUN, Z., YAMAMOTO, Y., Submission of FeCrAl feedstock for support of AFC ATR-2 irradiations, *Technical Report ORNL/TM-2016/426*, (2016)
- [14] GAMBLE, K.A., BARANI, T., PIZZOCRI, D., HALES, J.D., TERRANI, K.A., PASTORE, G., An investigation of FeCrAl cladding behavior under normal operating and loss of coolant conditions, *Journal of Nuclear Materials* **491** (2017) 55.
- [15] PASTORE, G., GAMBLE, K.A., HALES, J.D., Modeling Benchmark for FeCrAl Cladding in the IAEA CRP ACTOF: FeCrAl-C35M Material Models and Benchmark Cases Specifications, *Technical Report INL/EXT-17-43695*, Idaho National Laboratory (2017).
- [16] Kanthal APMT (Tube) Datasheet (2012), <http://kanthal.com/en/products/material-datasheets/tube/kanthal-apmt/>.
- [17] NIFFENEGGER, M., REICHLIN, K., The proper use of thermal expansion coefficients in finite element calculations, *Nuclear Engineering and Design* **243** (2012) 356.
- [18] YANO, Y., TANNO, T., SEKIO, Y., OKA, H., OHTSUKA, S., UWABA, T., KAITO, T., Tensile properties and hardness of two types of 11Cr-ferritic/martensitic steel after aging up to 45,000 h, *Nuclear Materials and Energy* **9** (2016) 324-330.
- [19] SAUNDERS, S.R.J., EVANS, H.E., LI, M., GOHIL, D.D., OSGERBY, S., Oxidation growth stresses in an alumina-forming ferritic steel measured by creep deflection, *Oxidation of Metals* **48** (1997)189.
- [20] FIELD, K.G., HU, X., LITRELL, K.C., YAMAMOTO, Y., SNEAD, L.L., Radiation tolerance of neutron-irradiated model Fe-Cr-Al alloys, *Journal of Nuclear Materials* **465** (2015) 746.
- [21] ERBACHER, F.J., NEITZEL, H.J., ROSINGER, H., SCHMIDT, H., WIEHR, K., "Burst criterion of Zircaloy fuel claddings in a loss-of-coolant accident", in: *Zirconium in the Nuclear Industry, Fifth Conference*, ASTM STP 754 (Franklin, D.G., Ed.), American Society for Testing and Materials (1982) 271–283.
- [22] WHITE, J.T., NELSON, A.T., DUNWOODY, J.T., BYLER, D.D., SAFARIK, D.J., McCLELLAN, K.J., Thermophysical properties of U₃Si₂ to 1773K, *Journal of Nuclear Materials* **464** (2015) 275.
- [23] HARP, J.M., HE, L., HOGAN, R.E., WAGNER, A.R., "Corrosion and interdiffusion studies of U₃Si₂", in *Proceedings of TopFuel*, Boise, ID, USA, 2016.
- [24] WOOD, E.S., WHITE, J.T., BYLER, D.D., NELSON, A.T., "The synthesis and air oxidation behavior of U-Si-Al and U-Si-B compositions", in *Proceedings of TopFuel*, Boise, ID, USA, 2016.
- [25] WHITE, J.T., WOOD, E.S., DUNWOODY, J.T., NELSON, A.T., "State of knowledge and challenges of U-Si compounds for use in light water reactor accident tolerant fuel designs", in: *Proceedings of TopFuel*, Boise, ID, USA, 2016.
- [26] GODDARD, D.T., MATHERS, D.P., EAVES, D.G., XU, P., LAHODA, E.J., HARP, J.M., "Manufacturability of U₃Si₂ and its high temperature oxidation behavior", in: *Proceedings of TopFuel*, Boise, ID, USA, 2016.
- [27] FINLAY, M.R., HOFMAN, G.L., SNELGROVE, J.L., Irradiation behaviour of uranium silicide compounds, *Journal of Nuclear Materials* **325** (2004) 118.
- [28] SHIMIZU, H., The properties and irradiation behavior of U₃Si₂, *Technical Report NAA-SR-10621*, Atomic International (1965).

- [29] BARANI, T., PASTORE, G., PIZZOCRI, D., ANDERSSON, D.A., MATTHEWS, C., ALFONSI, A., GAMBLE, K., VAN UFFELEN, P., LUZZI, L., HALES, J.D., Multiscale modeling of fission gas behavior in U_3Si_2 under LWR conditions, *Journal of Nuclear Materials* (2019) (submitted).
- [30] HARP, J.M., CAPPIA, F., CAPRIOTTI, L., Postirradiation Examination of the ATF-1 Experiments – 2018 Status, Technical Report INL/EXT-18-51497, NTRD-FUEL-2018-000054 (2018).
- [31] Update to the U_3Si_2 Property Handbook, Technical Report NTRD-M3NT-18LA020201033 LA-UR-18-28719, Los Alamos National Laboratory (2018).
- [32] KNACKE, O., KUBASCHEWSKI, O., HESSELMANN, K., "Thermochemical properties of inorganic substances", Berlin Heidelberg: Springer (1991) 1-2541 pp.
- [33] WHITE, J.T., NELSON, A.T., DUNWOODY, J.T., SAFARIK, D.J., McCLELLAN, K.J., Corrigendum to Thermophysical Properties of U_3Si_2 to 1777 K, *Journal of Nuclear Materials* **484** (2017) 386.
- [34] MOHAMAD, A., OHISHI, Y., MUTA, H., KUROSAKI, K., YAMANAKA, S., Thermal and mechanical properties of polyZrystalline U_3Si_2 synthesized by spark plasma sintering, *Journal of Nuclear Science and Technology* **55** (2018) 1141.
- [35] ANTONIO, D., SHRESTHA, K., HARP, J., ADKINS, C., ZHANG, Y., CARMACK, J., GOFRYK, K., Thermal and transport properties of U_3Si_2 , *Journal of Nuclear Material* **508** (2018) 154.
- [36] TAYLOR, K.M., McMURTRY, C.H., Synthesis and Fabrication of Refractory Uranium Compounds, Summary Report ORO-400 United States of America (1961).
- [37] CARVAJAL-NUNEZ, U., SALEH, T., WHITE, J., BAIOROV, B., NELSON, A., Determination of elastic properties of polyZrystalline U_3Si_2 using resonant ultrasound spectroscopy, *Journal of Nuclear Materials* **498** (2018) 438.
- [38] GAMBLE, K.A., HALES, J.D., PASTORE, G., Nuclear Energy Advanced Modeling and Simulation (NEAMS) Accident Tolerant Fuels High Impact Problem: U_3Si_2 Modeling Capabilities, Technical Report INL/EXT-17-43117, Idaho National Laboratory, USA (2017).
- [39] HOFMAN, G.L., RYU, W. S., Detailed Analysis of Uranium Silicide Dispersion Fuel Swelling, Technical Report CONF-8909141-10, Argonne National Laboratory (1989).
- [40] MIAO, Y., GAMBLE, K.A., ANDERSSON, D., YE, B., MEI, Z., HOFMAN, G., YACOUT, A.M., Gaseous swelling of U_3Si_2 during steady-state LWR operation: A rate theory investigation, *Nuclear Engineering and Design* **322** (2017) 336.
- [41] DECK, C.P., JACOBSEN, G.M., SHEEDER, J., GUTIERREZ, O., ZHANG, J., STONE, J., KHALIFA, H.E., BACK, C.A., Characterization of SiC-SiC composites for accident tolerant fuel cladding, *Journal of Nuclear Materials* **466** (2015) 667-681.
- [42] ZINKLE, S.J., TERRANI, K.A., GEHIN, J.C., OTT, L.J., SNEAD, L.L., Accident tolerant fuels for LWRs: A perspective, *Journal of Nuclear Materials* **448** (2014) 374-379.
- [43] KURATA, M., Research and Development Methodology for Practical Use of Accident Tolerant Fuel in Light Water Reactors, *Nuclear Engineering and Technology* **48** (2016) 26-32.
- [44] KIM, H.-G., YANG, J.-H., KIM, W.-J., KOO, Y.-H., Development Status of Accident-tolerant Fuel for Light Water Reactors in Korea, *Nuclear Engineering and Technology* **48** (2016) 1-15.
- [45] OTT, L.J., ROBB, K.R., WANG, D., Preliminary assessment of accident-tolerant fuels on LWR performance during normal operation and under DB and BDB accident conditions, *Journal of Nuclear Materials* **448** (2014) 520-533.
- [46] PINT, B.A., TERRANI, K.A., YAMAMOTO, Y., SNEAD, L.L., Material Selection for Accident Tolerant Fuel Cladding, *Metallurgical and Materials Transactions E* **2E** (2015).
- [47] DUAN, Z., YANG, H., SATOH, Y., MURAKAMI, K., KANO, S., ZHAO, Z., SHEN, J., ABE, H., Current status of materials development of nuclear fuel cladding tubes for light water reactors, *Nucl. Eng. Des.* **316** (2017) 131-150.
- [48] ASTM "Test Methods for Determining the Inclusion Content of Steel."
- [49] ASTM "Practice for Microetching Metals and Alloys."
- [50] ASTM "Practices for Detecting Susceptibility to Intergranular Attack in Austenitic Stainless Steels."
- [51] ASTM "Test Methods for Determining Average Grain Size."
- [52] KREJCI, J., SEVECEK, M., CVRCEK, L., Development of Chromium and Chromium Nitride Coated Cladding for VVER Reactors, WRFPM (2017).
- [53] TANG, C., et al., Deposition, characterization and high temperature steam oxidation behavior of single-phase Ti_2AlC -coated Zircaloy-4, *Corros. Sci.*, **135** (May 2018) 87-98,
- [54] KREJČÍ, J. et al., "Experimental behavior of Chromium-based coatings", Top Fuel 2018 - React. Fuel Perform., Paper A0233, Prague, Czech Republic (30.09.2018 - 4.10.2018).
- [55] KREJČÍ, J., ŠEVEČEK, M., CVRCEK, L., KABÁTOVÁ, J., MANOCH, F., "Chromium and Chromium Nitride Coated Cladding for Nuclear Reactor Fuel", in Proceedings of the 20th International Corrosion Congress, EUROCORR 2017, Prague, Czech Republic (2017).
- [56] TANG, C., et al., Synthesis and characterization of Ti_2AlC coatings by magnetron sputtering from three elemental targets and ex-situ annealing, *Surf. Coat. Technol* **309** (Jan. 2017) 445-455.
- [57] TANG, C., et al., Deposition, characterization and high temperature steam oxidation behavior of single-phase Ti_2AlC -coated Zircaloy-4, *Corros. Sci.* **135** (May 2018) 87-98.
- [58] EPRI NP-7077. PWR Primary Water Chemistry Guidelines: Revision 2. Palo Alto, CA: Electric Power Research Institute (1990).
- [59] ALLEN, T., BUSBY, J., MEYER, M., PETTI, D., Materials challenges for nuclear systems. *Materials Today* **13** 12 (2010) 14-23.

- [60] ALLEN, T.R., KONINGS, R.J.M., MOTTA, A.T., Corrosion of zirconium alloys (KONINGS, R.J.M., Ed.), Amsterdam Elsevier, Comprehensive nuclear materials **5**, (2012) 49-68.
- [61] BARSOUM, M.W., "MAX PHASES: Properties of machinable ternary carbides and nitrides." Weinheim, Germany, Wiley-VCH Verlag GmbH & KGaA (2013).
- [62] CHAIA, N., MATHIEU, S., ROUILLARD, F., VILASI, M., The ability of silicide coating to delay the catastrophic oxidation of vanadium under severe conditions. *J. Nucl. Mater.* **457** (2015) 124-129.
- [63] EPRI. PWR primary water chemistry guidelines. Revision 2. Palo Alto, CA, Electric Power Research Institute. Report EPRI NP-7077 (1990).
- [64] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Accident tolerant fuel concepts for light water reactors (Proc. of a Technical Meeting held at Oak Ridge National Laboratories, USA, 13-16 October 2014.), IAEA-TECDOC-1797, IAEA, Vienna (2016).
- [65] KRZEŚNIAK, A., SARTOWSKA, B., STAROSTA, W., WALIŚ, L., SMOLIK, J., MIŁKOWSKA, M., Silicon concentration changes in Zry-2 coated with Zr-Si and ZrSi₂-Cr during the autoclave oxidation tests (Proceedings of the 24th International Quench Workshop, Karlsruhe Institute of Technology KIT, Germany, 13-15.11.2018), (STEINBRUCK, M., Ed), Germany (2018).
- [66] LEE, Y.H., McKRELL, T., KAZIMI, M.S., Safety of light water reactor fuel with silicon carbide cladding. Massachusetts Institute of Technology. Advanced Nuclear Power Programme. MIT-ANP-TR-150 (2014).
- [67] MARIANI, R.D., MEDVEDEV, P., PORTER, D.L., HAYES, S.L., COLE, J.I., BAI, X.M., "Novel accident-tolerant fuel meat and cladding." In LWR Fuel Performance Meeting Top Fuel 2013 Charlotte, North Carolina, United States of America, 15-19 September 2013. Idaho Falls, Idaho, Idaho National Laboratory (2013) 763-770.
- [68] MASSALSKI, T.B., OKAMOTO, H., SUBRAMANIAN, P.R., KACPRZAK, L., Eds, "Binary alloy phase diagrams" 2nd edn, ASM International, Vol. 1 (1990). 3383-3385.
- [69] SARTOWSKA, B., STAROSTA, W., WALIŚ, L., MIŁKOWSKA, M., BARLAK, M., KOŁODZIEJCZAK, P., SMOLIK, J., RYDZEWSKI, M., TOMASSI, P., "Accident Tolerant Materials – Ideas and Research Directions", 23rd International QUENCH Workshop, 17-19 October 2017, Karlsruhe Institute of Technology, Karlsruhe, Germany (2017) 668-688.
- [70] SARTOWSKA, B., STAROSTA, W., WALIŚ, L., KRZEŚNIAK, A., SMOLIK, J., MIZERACKI, J., "Zirconium alloy coatings with Si based compounds - inct experiments", Proceedings of the 24th International Quench Workshop, Karlsruhe Institute of Technology KIT, Germany, 13-15.11.2018.
- [71] STAROSTA, W., BARLAK, M., BUCZKOWSKI, M., KOSIŃSKA, A., SARTOWSKA, B., WALIŚ, L., JANIĄK, T., Analiza mechanizmów tworzenia się oraz właściwości warstw tlenkowych powstających w wyniku rozkładu wody na powierzchni koszulek cyrkonowych oraz zbadanie wpływu modyfikacji struktury warstwy wierzchniej koszulek na procesy generacji wodoru. In: Analiza procesów generacji wodoru w reaktorze jądrowym w trakcie nornej eksploatacji i w sytuacjach awyjnnych z propozycjami działań na rzecz podnisenia poziomu bezpieczeństwa jądrowego Warszawa, Instytut Chemii Techniki Jądrowej (2015) 55-72.
- [72] STAROSTA, W., SEMINA, V.K., SMOLIK, J., WALIŚ, L., RYDZEWSKI, M., SARTOWSKA, B., Studies on magnetron-sputtered zirconium-silicide coatings deposited on zirconium alloy for the enhancement of their high temperature oxidation resistance, *Nukleonika* **63** 3 (2018) 73-79.
- [73] TANG, C., STUEBER, M., SEIFERT, H.J., STEINBRÜCK, M., Protective coatings on zirconium-based alloys as accident-tolerant fuel (ATF) claddings, *Corros. Rev.* **35** 3 (2017) 141-165.
- [74] TERRANI, K.A., ZINKLE, S.J., SNEAD, L.L., Advanced oxidation-resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding, *J. Nucl. Mater.* **448** (2014) 420-435.
- [75] US DEPARTMENT OF ENERGY, Development of self-healing zirconium-silicide coatings for improved performance zirconium-alloy fuel cladding. Final report. Nuclear Energy University Programme grant No. DE-NE 0008300, (2018).
- [76] YEOM, H., LOCKHART, C., MARIANI, R., XU, P., CORRADINI, M., SRIDHARAN, K., Evaluation of steam corrosion and water quenching behavior of zirconium-silicide coated LWR fuel claddings, *J. Nucl. Mater.* **499** (2018) 256-267.
- [77] YUEH, K., TERRANI, K.A., Silicon carbide composite for light water reactor fuel assembly applications, *J. Nucl. Mater.* **448** (2014) 380-388.
- [78] ZINKLE, S.J., TERRANI, K.A., GEHIN, J.C., OTT, L.J., SNEAD, L.L., Accident tolerant fuels: a perspective, *J. Nucl. Mater.* **448** (2014) 374- 379.
- [79] PAWEL, R.E., CATHCART, J.V., McKEE, R.A., The Kinetics of Oxidation of Zircaloy-4 in Steam at High Temperatures, *J. Electrochem. Soc.* **126** 7 (Jan. 1979) 1105-1111.
- [80] ŠEVEČEK, M., et al., Development of Cr cold spray-coated fuel cladding with enhanced accident tolerance, *Nucl. Eng. Technol.* **50** 2 (Mar. 2018) 229-236.
- [81] TANG, C., STEINBRÜCK, M., GROBE, M., Interlaboratory test in AKTOΦ project — High temperature steam oxidation test in KIT, Institute for Applied Materials (IAM), Karlsruhe Institute of Technology (KIT), D-76021 Karlsruhe, Germany.
- [82] PENTTILÄ, S., AUTIO, J.-M., LYDMAN, J., TAPPER, U., Performance of candidate ATF cladding materials in simulated high temperature steam and normal LWR conditions - Results of IAEA Coordinated Research Project "Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance" ACTOF.

- [83] KWON, Y., CORBET, J., The zirconium-tin system, with particular attention to the Zr_5Sn_3 - Zr_5Sn_4 Region and Zr_4Sn , *Chemistry of Materials* **2** 1 (January 1990) 27-33.
- [84] BAYKOV, V., et al., Structural stability of intermetallic phases in the Zr-Sn system, *Scripta Materialia* **55** (2006) 485-488.
- [85] McPHERSON, D.J., HANSEN, M., The System Zirconium-Tin, *Transactions ASM* **45** (1953) 915-933.
- [86] GRAN, G., ANDERSSON, S., The Crystal Structures of Zr_5Sn_3 and Zr_3Sn , *Acta Chemica Scandinavica* **14** (1960) 956.
- [87] LUO, H.L., VIELHABER, E., CORENZWIT, E., Occurrence of A-15 Phases, *Zeitschrift für Physik* **230** (1970) 443-448.
- [88] NAIK, V., BANERJEE, S., Precipitation in Dilute Zr-Sn Alloys, *Trans. Indian Institute of Metals* **31** (1978) 318.
- [89] KWON, Y.-U., CORBETT, J.D., Influence of Oxygen on the Stability of Zr_4Sn , *Chemistry of Materials* **4** (1992) 187.
- [90] ARIAS, D., ROBERTY, L., The solubility of tin in α and β zirconium below 1000°C, *Journal of Nuclear Materials* **118** (1983) 143.
- [91] CARMACK, J., GOLDNER, F., BRAGG-SITTON, S. M., SNEAD, L. L., Top Fuel 2013, North Carolina, Charlotte (15.09.2013-19.09.2013) 734.
- [92] PINT, B. A., TERRANI, K. A., BRADY, M. P., CHENG, T., KEISER, J. R., *J. of Nuclear Materials* **440** (2013) 420.
- [93] TERRANI, K. A., ZINKEL, S. J., SNEAD, L. L., Advanced oxidation-resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding, *J of Nuclear Materials* **448** 1-3 (2013) 420-435.
- [94] KIM, H. G., KIM, II-H., JUNG, Y-II., PARK, D. J., PARK, Y. Y., KOO, Y. H., Adhesion property and high temperature oxidation behavior of Cr-coated Zircaloy-4 cladding tube prepared by 3D laser coating, *J. of Nuclear Materials* **465** (October 2015) 531-539.
- [95] WANG, Y., ZHOU, W., WEN, Q., RUAN, X., LUO, F.A, BAI, G., QING, Y., ZHU, D., ZHANG, Y., LIU, T., LI, R., Behavior of plasma sprayed Cr coatings and FeCrAl coatings on Zr fuel cladding under loss-of-coolant accident conditions, *Surface & Coatings Technology* **344** (2018) 141-148.
- [96] HÓZER, Z., GYÖRI, C.S., MATUS, L., HORVÁTH, M., Ductile-to-brittle transition of oxidised Zircaloy-4 and E110 claddings, *Journal of Nuclear Materials* **373** (2008) 415-423.
- [97] KIRÁLY, M., KULACSY, K., HÓZER, Z., PEREZ-FERÓ, E., NOVOTNY, T., High temperature steam oxidation kinetics of the E110G cladding alloy, *Journal of Nuclear Materials*, **475** (2016) 27-36.
- [98] XU, P., Meeting Report of the 2nd Research Coordination Meeting related to the IAEA Coordinated Research Project T12030 on Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water cooled Reactors with Increased Accident Tolerance (AKTOΦ), Technical Report, IAEA, (2017).
- [99] YAMAMOTO, Y., PINT, B.A., TERRANI, K.A., FIELD, K.G., YANG, Y., SNEAD, L.L., Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors, *Journal of Nuclear Materials* **467** (2015) 703.
- [100] THOMPSON, Z.T., TERRANI, K.A., YAMAMOTO, Y., Elastic Modulus Measurement of ORNL ATF FeCrAl Alloys, Technical Report ORNL/TM-2015/632, Oak Ridge National Laboratory (2015).
- [101] MASSEY, C.P., TERRANI, K.A., DRYEPONDT, S.N., PINT, B.A., Cladding Burst avior of Fe-based Alloys Under LOCA, *Journal of Nuclear Mats* **470** (2016) 128.
- [102] TERRANI, K.A., PINT, B.A., UNOCIC, K.A., YANG, Y., SILVA, C.M., MEYER, H.M., III, REBAK, R.B., Uniform corrosion of FeCrAl alloys in LWR coolant environments, *Journal of Nuclear Materials* **479** (2016) 36.
- [103] TERRANI, K.A., KARLSEN, T.M., YAMAMOTO, Y., Input correlations for irradiation creep of FeCrAl and SiC based on in-pile Halden test results, Technical Report ORNL/TM-2016/191, Oak Ridge National Laboratory (May 2016).
- [104] FIELD, K.G., HOWARD, R., YAMAMOTO, Y., Experimental plan and irradiation target design for FeCrAl embrittlement screening tests conducted using the high flux isotope reactor, Technical Report ORNL/TM-2015/311, Oak Ridge National Laboratory (2015).
- [105] GAMBLE, K.A., BARANI, T., PIZZOCRI, D., HALES, J.D., TERRANI, K.A., PASTORE, G., An investigation of FeCrAl cladding behavior under normal operating and loss of coolant conditions, *Journal of Nuclear Materials* **491** (2017) 55.
- [106] PASTORE, G., GAMBLE, K.A., HALES, J.D., Modeling Benchmark for FeCrAl Cladding in the IAEA CRP ACTOF: FeCrAl-C35M Material Models and Benchmark Cases Specifications, Technical Report INL/EXT-17-43695, Idaho National Laboratory, (2017).
- [107] GEORGE, N.M., TERRANI, K.A., POWERS, J., WORRALL, A., MALDONADO, I., Neutronic analysis of candidate accident-tolerant cladding concepts in pressurized water reactors, *Annals of Nuclear Energy* **75** (2015) 703.
- [108] PEREZ-FERÓ, E., HÓZER, Z., NOVOTNY, T., KRACZ, G., HORVÁTH, M., NAGY, I., VIMI, A., PINTÉR-CSORDÁS, A., GYÖRI C.S., MATUS, L., VASÁROS, L., WINDBERG, P., MARÓTI, L., Technical Report EK-FRL-2012-255-01/02, Center for Energy Research, Hungarian Academy of Sciences, Budapest, Hungary (2013).
- [109] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC), Final Report of a Coordinated Research Project – CRP T12028 (2014–2018), Technical Report IAEA-TECDOC-1889, IAEA, Vienna (2019).
- [110] WILLIAMSON, R.L., HALES, J.D., NOVASCONE, S. R., TONKS, M.R., GASTON, D.R., PERMANN C.J., ANDRS, D., MARTINEAU, R.C., Multidimensional multiphysics simulation of nuclear fuel behavior, *Journal of Nuclear Materials* **423** (2012) 149.
- [111] GASTON, D., NEWMAN, C., HANSEN, G., LEBRUN-GRANDIÉ, D., MOOSE: A parallel computational framework for coupled systems of nonlinear equations, *Nuclear Engineering and Design* **239** (2009) 1768.
- [112] RASHID, M.M., Incremental kinematics for finite element applications, *International Journal of Numerical Methods and Engineering* **36** (1993) 3937.

- [113] HALES, J.D., WILLIAMSON, R.L., NOVASCONE, S.R., PASTORE, G., SPENCER, B.W., STAFFORD, D.S., GAMBLE, K.A., PEREZ, D.M., GARDNER, R.J., LIU, W., GALLOWAY, J., MATTHEWS, C., UNAL, C., CARLSON, N., BISON theory manual: The equations behind nuclear fuel analysis, Technical Report INL/EXT-13-29930 Rev. 3, Idaho National Laboratory (2016).
- [114] PASTORE, G., SWILER, L.P., HALES, J.D., NOVASCONE, S.R., PEREZ, D.M., SPENCER, B.W., LUZZI, L., VAN UFFELEN, P., WILLIAMSON, R.L., Uncertainty and sensitivity analysis of fission gas behavior in engineering-scale fuel modeling, *Journal of Nuclear Materials* **465** (2015) 398.
- [115] WILLIAMSON, R.L., GAMBLE, K.A., PEREZ, D.M., NOVASCONE, S.R., PASTORE, G., GARDNER, R.J., HALES, J.D., LIU, W., MAI, A., Validating the BISON fuel performance code to integral LWR experiments, *Nuclear Engineering and Design* **301** (2016) 232.
- [116] Assessment of BISON: A Nuclear Fuel Performance Analysis Code. BISON Release 1.3, Technical Report INL/MIS-13-30314 Rev. 3, Idaho National Laboratory (2016).
- [117] PASTORE, G., NOVASCONE, S.R., WILLIAMSON, R.L., HALES, J.D., SPENCER, B.W., STAFFORD, D.S., "Modelling of fuel behaviour during loss-of-coolant accidents using the BISON code", in Proc. of the LWR Fuel Performance Meeting, Zurich, Switzerland, September 13–17, 2015.
- [118] PASTORE, G., WILLIAMSON, R.L., NOVASCONE, S.R., SPENCER, B.W., HALES, J.D., "Modelling of LOCA tests with the BISON fuel performance code", in Enlarged Halden Programme Group Meeting, Fornebu, Norway, May 8–13, 2016.
- [119] WILLIAMSON, R.L., FOLSOM, C.P., PASTORE, G., VEEARAGHAVAN, S., Reactivity insertion accident (RIA) capability status in the BISON fuel performance code, Technical Report CASL-X-2016-1104-000, Consortium for Advanced Simulation of LWRs (2016).
- [120] PASTORE, G., FOLSOM, C.P., WILLIAMSON, R.L., HALES, J.D., LUZZI, L., PIZZOCRI, D., BARANI, T., "Modelling fission gas behaviour with the BISON fuel performance code", in Enlarged Halden Programme Group Meeting, Lillehammer, Norway, September 24–29, 2017.
- [121] HALES, J.D., WILLIAMSON, R.L., NOVASCONE, S.R., PEREZ, D.M., SPENCER, B.W., PASTORE, G., Multidimensional Multiphysics Simulation of TRISO Particle Fuel, *Journal of Nuclear Materials* **443** (2013) 531.
- [122] LASSMANN, K., URANUS - A computer programme for the thermal and mechanical analysis of the fuel rods in a nuclear reactor, *Nuclear Engineering and Design* **45** (1978) 325.
- [123] LASSMANN, K., TRANSURANUS - A fuel rod analysis code ready for use, *Journal of Nuclear Materials* **188** (1992) 295.
- [124] LASSMANN, K., RONCHI, C., SMALL, G.J., The development of fuel performance models at the European Institute for Transuranium Elements, *Journal of Nuclear Materials* **166** (1989) 112.
- [125] LASSMANN, K., O'CARROL, C., VAN DE LAAR, J., WALKER, C. T., The radial distribution of plutonium in high burnup UO₂ fuels, *Journal of Nuclear Materials* **208** (1994) 223.
- [126] LASSMANN, K., WALKER, C.T., VAN DE LAAR, J., LINDSTRÖM, F., Modelling the high burnup UO₂ structure in LWR fuel, *Journal of Nuclear Materials* **226** (1995) 1.
- [127] LASSMANN, K., VAN DE LAAR, J., "The Transient TRANSURANUS version", Proceedings of IAEA RER/4/019, Licensing Fuel and Fuel Modelling Codes for WWER Reactors, Seminar "Implementation of the WWER version of the TRANSURANUS code and its application to safety criteria", Sofia, Bulgaria, 7-11 December 1998.
- [128] VAN UFFELEN, P., GYORI, C., SCHUBERT, A., VAN DE LAAR, J., HOZER, Z., SPYKMAN, G., Extending the application range of a fuel performance code from normal operating to design basis accident conditions, *Journal of Nuclear Materials* **383** (2008) 137.
- [129] GYORI, C., HÓZER, Z., LASSMANN, K., SCHUBERT, A., VAN DE LAAR, J., HATALA, B., CVAN, M., Extension of Transuranus code applicability with Niobium containing cladding models (EXTRA) , Final Report, EVOL-EXTRA-D5 / FIKS-CT2001-00173 (2004).
- [130] SPYKMAN, G., MÄRTENS, D., BOUR, D., KOCK, P., LASSMANN, K., SCHUBERT, A., VAN DE LAAR, J., "Implementation of a Cladding Failure Model for a Loss of Coolant Accident (LOCA)-Analysis in Transuranus", Proceedings of Enlarged Halden Programme Group Meeting on High Burn-up Fuel Performance, Safety and Reliability, Sandefjord, Norway, 9-14 May 2004.
- [131] DI MARCELLO, V., SCHUBERT, A., VAN DE LAAR, J., VAN UFFELEN, P., The TRANSURANUS mechanical model for large strain analysis, *Nuclear Engineering and Design* **276** (2014) 19.
- [132] PASTORE, G., LUZZI, L., DI MARCELLO, V., VAN UFFELEN, P., Physics-based modelling of fission gas swelling and release in UO₂ applied to integral fuel rod analysis, *Nuclear Engineering and Design* **256** (2013) 75.
- [133] DI MARCELLO, V., RONDINELLA, V., SCHUBERT, A., VAN DE LAAR, J., VAN UFFELEN, P., Modelling actinide redistribution in mixed oxide fuel for sodium fast reactors, *Progress in Nuclear Energy* **72** (2014) 83.
- [134] DI MARCELLO, V., SCHUBERT, A., VAN DE LAAR, J., VAN UFFELEN, P., Extension of the TRANSURANUS plutonium redistribution model for fast reactor performance analysis, *Nuclear Engineering and Design* **248** (2012) 149.
- [135] LASSMANN, K., HOHLEFELD, F., The revised URGAP model to describe the gap conductance between fuel and cladding, *Nuclear Engineering and Design* **103** (1987) 215.
- [136] SCHUBERT, A., VAN UFFELEN, P., VAN DE LAAR, J., WALKER, C.T., HAECK, W., Extension of the TRANSURANUS burn-up model, *Journal of Nuclear Materials* **376** (2008) 1.
- [137] ICHIKAWA, M., "On the theory of FEMAXI, an axisymmetric finite element programme for analysis of local deformations of operating fuel rods", HIR-93, 1978.
- [138] SUZUKI, M., SAITOU, H., UDAGAWA, Y., NAGASE, F., "Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-7; Model and Structure", JAEA-Data/Code 2013-005, July 2013.
- [139] SUZUKI, M., SAITOU, H., UDAGAWA, Y., NAGASE, F., "Input/Output Manual of Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-7 and Its Related Codes", JAEA-Data/Code, 2013-009 (October 2013).

- [140] TVERBERG, T., WIESENACK, W., "Thermal Performance of High Burnup Fuel – In-pile Temperature Data and Analysis–", in Proc. 2000 Int. Topical Mtg. on LWR Fuel, Park City, USA (2000).
- [141] "MATPRO-09, A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior", USNRC TREE NUREG-1005 (1976).
- [142] HAGRMAN, D.L., REYMANN, G.A., "MATPRO-Version11, A Handbook of Materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior", NUREG/CR-0497, TREE-1280, Rev.3 (1979).
- [143] TACHIBANA, T., FURUYA, H., KOIZUMI, M., Dependence on Strain Rate and Temperature Shown by Yield Stress of Uranium Dioxide, *J. Nucl. Sci. Technol.* **13** (1976) 497.
- [144] ITOH, K., IWASAKI, R., IWANO, Y., Finite Element Model for Analysis of Fission Gas Release from UO₂ Fuel, *J. Nucl. Sci. Technol.* **22**(1985) 129.
- [145] GEELHOOD, K., LUSCHER, W., RAYNAUD, P., PORTER, I., FRAPCON-4.0: A Computer Code for the Calculation of Steady-state, Thermal-Mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup, Technical Report PNNL-19418, Vol. 1, Rev.2, Pacific Northwest National Laboratory, USA (2015).
- [146] MARINO, A.C., SAVINO, E.J., HARRIAGUE, S., BaCo (BARRA Combustible) Code Version 2.20: a thermo-mechanical description of a nuclear fuel rod, *Journal of Nuclear Materials* **229** (1996) 155.
- [147] MARINO, A.C., Starting Point, Keys and Milestones of a Computer Code for the Simulation of the Behaviour of a Nuclear Fuel Rod, *Science and Technology of Nuclear Installations* (2011).
- [148] SAH, D.N., VISWANATHAN, U.K., VISWANATHAN, C.S., UNNIKRISHNAN, K., RATH, B.N., Blind Prediction exercise on modelling of PHWR fuel at extended burnup, *Journal of Nuclear Materials* **383** (2008) 144.
- [149] ROSSITER, G., MASSARA, S., AMAYA, M., BOLDT F., COZZO, C., DENIS, A., DOSTAL, M., HE, X., HERRANZ, L., KOZLOWSKI, T., KRUPKIN, A., MARCHAND, O., MARELLE, V., MARINO, A., ORTEGO, P., POWERS J., PRUDIL, A., ROZZIA, D., SCHUBERT, A., VESHCHUNOV, M., WIESENACK, W., WILLIAMSON, R., ZHANG, J., OECD/NEA benchmark on pellet-clad mechanical interaction modelling with fuel performance codes, OECD/NEA Workshop on Pellet cladding Interaction (PCI) in Water cooled Reactors, Lucca, Italy (2016).
- [150] MARINO, A.C., "Computer simulation of the behaviour and performance of a CANDU fuel rod", in Proceedings of the 5th International Conference on CANDU Fuel, Toronto, Canada, September 1997.
- [151] MARINO, A.C., FLORIDO, P.C, High power ramping in commercial PHWR fuel at extended burnup, *Nuclear Engineering and Design* **236** 13 (2006) 1371.
- [152] BOADO MAGAN, H., et al., CAREM Projects Status, *Science and Technology of Nuclear Installations* (2011).
- [153] MARINO, A.C., ADELFIANG, P., PÉREZ E.E., Irradiation of Argentine MOX fuels. Post-irradiation results and experimental analysis with the BaCo code, *Journal of Nuclear Materials* **229** (1996) 169.
- [154] BRASNAROF, D.O., et al, A New Fuel Design for Two Different HW Type Reactors, *Science and Technology of Nuclear Installations* (2011).
- [155] MARINO, A.C., "Crack and dishing evolution models and PCI-SCC considerations for fuel pellets in a quasi-bidimensional environment", in Proceedings of the Les Journées de Cadarache 2004, International Seminar on Pellet-Clad Interaction in Water Reactor Fuels, Aix en Provence, France (2004).
- [156] DEMARCO, G.L., MARINO, A.C., 3D Finite Elements Modelling for Design and Performance Analysis of UO₂ Pellets, *Science and Technology of Nuclear Installations* (2011).
- [157] MARINO, A.C., et al., "Sensitivity analysis applied to nuclear fuel performance related to fabrication parameters and experiments", in Proceedings of the 14th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Lyon, France, August 1997.
- [158] MARINO, A.C., "An overview of the dry storage of nuclear fuels with the BaCo code", Proceedings of the 8th International Conference on WWR Fuel Performance, Modelling and Experimental Support, Helena Resort near Burgas, Bulgaria, September 26-October 4, 2009.
- [159] BARANI, T., PIZZOCRI, D., PASTORE, G., LUZZI, L., HALES, J.D., Isotropic softening model for fuel cracking in BISON, *Nuclear Engineering and Design* **342** (2019) 257.
- [160] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Waterside Corrosion of Zirconium Alloys in Nuclear Power Plants, IAEA-TECDOC-996, IAEA, Vienna (1998)
- [161] VITANZA, C., GRAZIANI, U., FORDESTROMMEN, N.T., VILPPONEN, K.O., "Fission Gas Release from in-pile Measurements", in Proceedings of Enlarged Halden Programme Group Meeting, Vol. HPR-221.10, OECD Halden Reactor Project, Loen, Norway, 1978.
- [162] WALKER, C.T., KNAPPIK, P., MOGENSEN, M., Concerning the development of grain face bubbles and fission gas release in UO₂ fuel, *Journal of Nuclear Materials* **160** (1988) 10.
- [163] PASTORE, G., PIZZOCRI, D., HALES, J. D., NOVASCONE, S.R., PEREZ, D.M., SPENCER, B.W, WILLIAMSON, R.L., VAN UFFELEN, P., LUZZI, L., "Modelling of Transient Fission Gas Behaviour in Oxide Fuel and Application to the BISON Code", in Proceedings of Enlarged Halden Programme Group Meeting, OECD Halden Reactor Project, Rorøs, Norway, 7-12 September 2014.
- [164] BARANI, T., BRUSCHI, E., PIZZOCRI, D., PASTORE, G., VAN UFFELEN, P., WILLIAMSON, R.L., Analysis of transient fission gas behaviour in oxide fuel using BISON and TRANSURANUS, *Journal of Nuclear Materials* **486** (2017) 96.
- [165] PINT, B.A., TERRANI, K.A., BRADY, M.P., CHENG, T., KEISER, J.R., High temperature oxidation of fuel cladding candidate materials in steam-hydrogen environments, *Journal of Nuclear Materials* **440** (2013) 420–427.
- [166] UNOCIC, K.A., YAMAMOTO, Y., PINT, B.A., Effect of Al and Cr Content on Air and Steam Oxidation of FeCrAl Alloys and Commercial APMT Alloy, *Oxidation of Metals* **87** (2017) 431–441.
- [167] PINT, B.A., TERRANI, K.A., YAMAMOTO, Y., SNEAD, L.L., Material Selection for Accident Tolerant Fuel Cladding, *Metallurgical and Materials Transactions E* **2** (2015) 190-196.

- [168] FIELD, K.G., SNEAD, M.A., YAMAMOTO, Y., TERRANI, K.A., Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications, Report ORNL/SPR-2018/905.
- [169] ROBB, K.R., HOWELL, M., OTT, L.J., Parametric and Experimentally Informed BWR Severe Accident Analysis Using FeCrAl, Report ORNL/SPR-2017/373.
- [170] GURGEN, A., SHIRVAN, K., Estimation of coping time in pressurized water reactors for near term accident tolerant fuel claddings, *Nuclear Engineering and Design* **337** (2018) 38-50.
- [171] PINT, B.A., Performance of FeCrAl for accident-tolerant fuel cladding in high temperature steam, *Corrosion Reviews* **35** 3 (2017) 167–175.
- [172] STUCKERT, J., GROßE, M., LAIER, J., MOCH, J., PETERS, U., STEGMAIER, U., STEINBRÜCK, M., TERRANI, K., "First results of the bundle test QUENCH-19 with FeCrAl claddings", Proceedings of 24th International Quench Workshop, 13.11.2018 – 15.11.2018, Karlsruhe (2018).
- [173] AUSTREGESILO, H., et al., ATHLET-CD 3.2 User's Manual, GRS Report, GRS-P-4 Vol. 1 (Dec. 2018) .
- [174] BOLSHOV, L.A., DOLGANOV, K.S., KISELEV, A.E., STRIZHOV, V.F., Results of SOCRAT code development, validation and applications for NPP safety assessment under severe accidents, *Nuclear Engineering and Design* **341** (2019) 326-345.
- [175] IVEKOVIĆ, A., et al., Current status and prospects of SiCf/SiC for fusion structural applications, *Journal of the European Ceramic Society* **33** 10 (2013) 1577-1589.
- [176] MERRILL, B.J., BRAGG-SITTON, S.M., HUMRICKHOUSE, P.W., Modification of MELCOR for severe accident analysis of candidate accident tolerant cladding materials. *Nuclear Engineering and Design* **315** (2017) 170-178.
- [177] CARPENTER D.M., et al. Assessment of Innovative Fuel Designs for high performance light water reactor, Massachusetts Institute of Technology (2006).
- [178] TERRANI, K.A., Silicon Carbide Oxidation in Steam до 2 МПа, *Journal of the American Ceramic Society*, **97** 8 (2014) 2331-2352.
- [179] SNEAD, L.L., et al. Handbook of SiC properties for fuel performance modeling. *Journal of Nuclear Materials* **371**(2007) 329-377.
- [180] OZAWA, K., et al., Mechanical properties of advanced SiC/SiC composites of neutron irradiation, *Journal of Nuclear Materials* **367-370** (2007)713-718.
- [181] KATOH, Y., et al., Continuous SiC fiber, CVI SiC matrix composites for nuclear application: properties and irradiation effects, *Journal of Nuclear Materials* **448** 1-3(2004) 448-476.
- [182] KREJČÍ, J., et al., Development and testing of multicomponent fuel cladding with enhanced accidental performance, *Nuclear Engineering and Technology* (2019).

ПРИЛОЖЕНИЕ

Дополнительные файлы документов для этой публикации можно найти на английском языке на отдельной веб-странице публикации по адресу www.iaea.org/publications. К ним относятся:

A STARTING POINT OF THE ASSESSMENT OF ACCIDENT TOLERANT FUELS	1
<i>A.C. Marino, L. Furlano, G.L. Demarco, A. Baruj, H. Mosca, S. Jaroszewicz, E.L. Losada, G. Bozzolo, A. Yawny, E. Dari</i>	
PERFORMANCE OF ACCIDENT TOLERANT FUEL USING IRON-BASED ALLOY AS CLADDING	24
<i>C. Giovedi, T. Carluccio, M. R. Martins, A. Abe, A. T. Silva, R. O. R. Muniz</i>	
ANALYSIS AND ASSESSMENT OF SILICON CARBIDE CLADDING PERFORMANCE UNDER ACCIDENT CONDITION IN PWR.....	42
<i>T. Liu, M.T. Chen, Y.R. Xie, L. Li</i>	
PERFORMANCE MODELING OF FCM PELLET AND SiC CLADDING.....	54
<i>P. Chen, S.C. Liu, Y. Zhou, S.X. Gao, W.J. Li, L. He, H.Y. Lu, S. Xing</i>	
PRELIMINARY MODELING AND SIMULATION OF FUEL ROD WITH SiC _F /SiC CLADDING FOR LWRS	72
<i>X.Y. Shang, A.M. Zhang, S.Y. Zhang</i>	
DEVELOPMENT AND TESTING OF COATED FUEL CLADDING FOR WWER REACTORS WITH ENHANCED ACCIDENT TOLERANCE.....	87
<i>M. Ševeček, J. Krejčí, A. Chalupová, L. Cvrček, J. Kabátová, F. Manoch, J. Kočí, K. Shirvan, R.G. Ballinger, T. Novotny, E. P. Feró, Z. Hózer</i>	
PERFORMANCE OF CANDIDATE ATF CLADDING MATERIALS IN SIMULATED HIGH TEMPERATURE STEAM AND NORMAL LWR CONDITIONS	104
<i>S. Penttilä, J-M. Autio, J. Lydman, U. Tapper</i>	
POST TEST SIMULATION OF QUENCH TEST 19 WITH ATHLET-CD.....	151
<i>C. Bals, T. Hollands</i>	
FIRST RESULTS OF THE BUNDLE TEST QUENCH-19 WITH FeCrAl CLADDINGS	160
<i>J. Stuckert, M. Große</i>	
ROUND ROBIN HIGH TEMPERATURE OXIDATION TESTS AT KIT	170
<i>C. Tang, M. Steinbrueck, M. Grosse</i>	
FABRICATION OF Cr ₂ AlC COATINGS AT ZIRCALOY-4 AT KIT	188
<i>C. Tang, M. Steinbrueck, M. Gpocse, S. Ulrich, M. Stueber</i>	
SIMULATION OF FeCrAl CLADDED FUEL ROD	190
<i>M. Cherubini</i>	
FEMAXI-7 ANALYSIS FOR MODELING BENCHMARK FOR FeCrAl	199
<i>A. Yamaji, N. Susuki, Y. Kaji</i>	

DEVELOPMENT AND IMPLEMENTATION IN THE FRAPCON CODE OF ACCIDENT TOLERANT FUEL MODELS FOR COATED ZIRCALOY CLADDING AND METALLIC MICROCELL UO ₂ PELLETT.....	210
<i>C. Shin, H.C. Kim, Y.S. Yang, Y.H. Koo</i>	
SILICIDE/SILICATE COATINGS ON ZIRCONIUM ALLOYS FOR IMPROVING THE HIGH TEMPERATURE CORROSION RESISTANCE.....	223
<i>B. Sartowska, W. Starosta, L. Waliś, M. Milkowska, A. Krześniak, E. Pańczyk, P. Kalbarczyk, K. Kulisa, M. Barlak, J. Smolik, M. Rydzewski, V.K. Semina, P. Tomassi, P. Kołodziejczak, J. Mizeracki, A. Presz, J. Maurin</i>	
RESULTS OF SA MODELING AT A LWR WITH FeCrAl CLADDINGS.....	245
<i>K. Dolganov, A. Kiselev, T. Yudina</i>	
NEW ATF CONCEPTS AND MATERIALS: EVALUATION AND INVESTIGATIONS	255
<i>A.M. Savchenko, L.A. Karpyuk, V.V. Novikov, V.K. Orlov</i>	
MODELING FeCrAl CLADDING AND U ₃ Si ₂ FUEL USING THE BISON CODE.....	271
<i>G. Pastore, K.A. Gamble, J.D. Hales</i>	
DEVELOPMENT OF ACCIDENT TOLERANT FUEL (ATF) FOR LWRS	282
<i>P. Xu</i>	

СОКРАЩЕНИЯ

АНЛ	Айдахская национальная лаборатория (Соединенные Штаты Америки)
ВВЭР	водо-водяной энергетический реактор
ВТ	высокотемпературный
ВУ	выбранный участок
ВЭ	вторичные электроны
ИВЭ	изображение во вторичных электронах
ИОРЭ	изображения в обратно рассеянных электронах
ИУТ	Институт устойчивых технологий (ITS, Радом, Польша)
ИЯХТ	Институт ядерной химии и технологии (INCT, Польша)
КИАЭ	Китайский институт атомной энергии (CIAE)
КИС	контролируемое испарение и смешивание
КНИИЯЭТ	Китайский научно-исследовательский институт ядерных энерготехнологий (CNNRI)
КТР	коэффициент теплового расширения
МЭ США	Министерство энергетики США
НВХР	нормальный водно-химический режим
НКАЭ	Национальная комиссия по атомной энергии (CNEA, Аргентина)
ОРК	общий растворенный кислород
ОРНЛ	Окриджская национальная лаборатория
ПКИ	проект координированных исследований
ППР	предел прочности на растяжение
ПТ	предел текучести
РД	рентгеновская дифракция (XRD)
РОА	рекристаллизованный оксид алюминия
СЭМ	сканирующий(ая) электронный(ая) микроскоп(ия)
ТИК	Технологический институт Карлсруэ (KIT, Германия)
ТРГ-ХТТ	техническая рабочая группа по характеристикам и технологии топлива
УИР	усовершенствованный испытательный реактор
УСП	Университет Сан-Паулу (USP, Бразилия)
ЧТУ	Чешский технический университет (CTU)
ЭДС	энергодисперсионная рентгеновская спектроскопия (EDS)
ЭРМ	энергодисперсионный рентгеновский микроанализатор (EDX)
ЯААЭ	Японское агентство по атомной энергии (JAEA, Япония)
АТФ	топливо, устойчивое к авариям (толерантное топливо)

BWR	кипящий реактор
CANDU	канадский тяжеловодный урановый ядерный реактор
CASL	Консорциум по усовершенствованному моделированию легководных реакторов
IGF	плавка в инертном газе
JFNK	(безматричный) метод Ньютона-Крылова
LOCA	авария с потерей теплоносителя
LWR	легководный реактор
MOOSE	среда мультифизического объектно-ориентированного моделирования
MOX	смешанное оксидное (топливо)
MTA EK	Центр энергетических исследований Венгерской академии наук
NEAMS	усовершенствованное моделирование и имитация в области ядерной энергии
NINE	Компания «Ядерная и промышленная инженерия» (Италия)
PHWR	корпусной тяжеловодный реактор
PNNL	Тихоокеанская северо-западная национальная лаборатория
PVD	осаждение из паровой фазы
PWR	реактор с водой под давлением
UBM	несбалансированный магнетрон

СПИСОК ГЛАВНЫХ НАУЧНЫХ ИССЛЕДОВАТЕЛЕЙ

Chen, P.	Ядерно-энергетический институт Китая, Китай
Cherubini, M.	Компания «Ядерная и промышленная инженерия» (NINE), Италия
Giovedi, C.	Университет Сан-Паулу (УСП), Бразилия
Grosse, M.	Технологический институт Карлсруэ, Германия
Kaji, Y.	Японское агентство по атомной энергии, Япония
Киселев, А.	Институт проблем безопасного развития атомной энергетики (ИБРАЭ) Российской Академии наук, Российская Федерация
Koo, Y.H.	Корейский научно-исследовательский институт атомной энергии, Корея, Республика
Liu, T.	Китайский научно-исследовательский институт ядерных энерготехнологий (КНИИЯЭТ), Китай
Marino, A.	Национальная комиссия по атомной энергии (НКАЭ), Аргентина
Pastore, G.	Айдахская национальная лаборатория, Соединенные Штаты Америки
Sartowska, B.	Институт ядерной химии и технологии Польша
Савченко, А.	Акционерное общество «Высокотехнологический научно- исследовательский институт неорганических материалов им. академика А.А. Бочвара» (АО «ВНИИНМ») Российская Федерация
Ševeček, M.	Чешский технический университет (ЧТУ), Чешская Республика
Sinha, S.	Центр атомных исследований им. Бхабхи (ЦАИ), Индия
Toivonen, A.	Технический исследовательский центр Финляндии (VTT), Финляндия
Xu, P. (Председатель)	Компания «Вестингауз электрик» Соединенные Штаты Америки
Zhang, A.	Китайский институт атомной энергии (КИАЭ), Китай

СОСТАВИТЕЛИ И РЕЦЕНЗЕНТЫ

Cherubini, M.	Компания «Ядерная и промышленная инженерия», Италия
Pastore, G.	Айдакская национальная лаборатория, Соединенные Штаты Америки
Penttilä, S.	Центр технических исследований VTT, Финляндия
Ševeček, M.	Чешский технический университет, Чешская республика
Stuckert, J.	Технологический институт Карлсруэ, Германия
Вещунов, М.	Международное агентство по атомной энергии
Xu, P.	Компания «Вестингауз электрик», Соединенные Штаты Америки
Zozulia, I.	Международное агентство по атомной энергии

1-я совещание по координации исследований

Вена, Австрия: 2–4 ноября 2015 года

2-я совещание по координации исследований

Вена, Австрия: 20–22 июня 2017 года

3-е совещание по координации исследований

Вена, Австрия: 26–29 ноября 2018 года

Совещание консультантов

Вена, Австрия: 28 февраля-1 марта 2019 года



IAEA

Международное агентство по атомной энергии

№ 26

ЗАКАЗ В СТРАНАХ

Платные публикации МАГАТЭ могут быть приобретены у перечисленных ниже поставщиков или в крупных книжных магазинах.

Заказы на бесплатные публикации следует направлять непосредственно в МАГАТЭ. Контактная информация приводится в конце настоящего перечня.

СЕВЕРНАЯ АМЕРИКА

Bernan / Rowman & Littlefield

15250 NBN Way, Blue Ridge Summit, PA 17214, USA

Тел.: +1 800 462 6420 • Факс: +1 800 338 4550

Эл.почта: orders@rowman.com • Сайт: <http://www.rowman.com/bernan>

ОСТАЛЬНЫЕ СТРАНЫ

Просьба связаться с местным поставщиком по вашему выбору или с вашим основным дистрибьютером:

Eurospan Group

Gray's Inn House

127 Clerkenwell Road

London EC1R 5DB

United Kingdom

Торговые заказы и справочная информация:

Тел: +44 (0) 1767604972 • Факс: +44 (0) 1767601640

Эл.почта: eurospan@turpin-distribution.com

Индивидуальные заказы:

www.eurospanbookstore.com/iaea

Дополнительная информация:

Тел: +44 (0) 2072400856 • Факс: +44 (0) 2073790609

Эл.почта: info@eurospangroup.com • Сайт: www.eurospangroup.com

Заказы на платные и бесплатные публикации можно направлять напрямую по адресу:

Группа маркетинга и сбыта (Marketing and Sales Unit)

Международное агентство по атомной энергии

Vienna International Centre, PO Box 100, 1400 Vienna, Austria

Телефон: +43 1 2600 22529 или 22530 • Факс: +43 1 26007 22529

Эл.почта: sales.publications@iaea.org • Сайт: <https://www.iaea.org/ru/publikacii>

Международное агентство по атомной энергии
Вена