

УДК 621.039.543

Библиотеки свойств сплавов U-Mo и 42XNM для проектного кода СТАРТ-4А

П.Г. Демьянов, А.А. Ханков, А.И. Королева, А.М. Савченко, Е.А. Дергунова, Л.А. Карпюк
АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических
материалов имени академика А.А. Бочвара», Москва

В настоящее время в АО «ВНИИНМ» проводится комплекс работ по изучению и внедрению перспективных материалов для твэлов, которые обладают альтернативными характеристиками по сравнению со штатным топливом для легководных реакторов.

В исследовательском реакторе МИР проводится облучение экспериментальных твэлов контейнерного типа с оболочкой из сплава 42XNM и таблеточным топливом из сплава U-Mo.

Для кода СТАРТ-4А разработаны библиотеки свойств, позволяющие проводить расчетные исследование поведения ATF твэлов контейнерного типа с уран-молибденовым топливом и оболочкой из сплава 42XNM.

Ключевые слова: моделирование, свойства, старт-4а, atf, u-мо, 42хnm.

Property libraries of U-Mo and 42XNM alloys for fuel performance code START-4A

P.G. Demyanov, A.A. Khankov, A.I. Koroleva, A.M. Savchenko,
E.A. Dergunova, L.A. Karpyuk
JSC « A. A. Bochvar High-tech Research Institute of Inorganic Materials», Moscow
PGDemyanov@bochvar.ru, AAKhankov@bochvar.ru

Set of works on development of perspective materials with ATF properties for fuel rod production is currently under way in JSC “VNIINM”.

Irradiation of experimental fuel rods with 42XNM alloy cladding and U-Mo pellet fuel under LWR conditions is performed in research reactor MIR.

Property libraries of U-Mo and 42 XNM alloys have been developed for fuel performance code START-4A. Code is ready to use for numerical investigation of fuel behavior in the future experiments and exploitation.

Key words: modelling, properties, START-4a, atf, U-Mo, 42XNM.

ВВЕДЕНИЕ

Данная статья посвящена разработке библиотек свойств для расчетных исследований ATF-твэлов с применением сплава U-Mo в качестве топлива и сплава 42XNM в качестве материала оболочки.

В 1950-е годы активно проводились работы по изучению свойств уран-молибденовых сплавов в исследовательских реакторах в России и США [1, 2]. Накоплен большой опыт эксплуатации уран-молибденового топлива в виде крупки, распределенной в алюминиевой матрице в твэлах исследовательских реакторов

с температурой теплоносителя (воды) около 100 °С и топлива 100-200 °С [3].

Начиная с 1960 года, в импульсных реакторах, таких как Godiva IV, использовались сплавы U-Mo с содержанием молибдена выше 10 масс. % [4]. В 1990-е годы проводилась работа по созданию U-Mo топлива в рамках программы ВОУ-НОУ [4].

Также сплав U-Mo с содержанием молибдена 9 масс. % в виде дисперсионного топлива в матрице из магния использовался в реакторах на тепловых нейтронах с температурой воды 270-300 °С и топлива не выше 400 °С [5, 6]. Тепловые потоки,

интенсивность делений и полученное выгорание при использовании такого топлива были значительно ниже, чем в реакторе ВВЭР-1000. Кроме того, в связи с поисками материалов для ATF-твэлов, интерес к использованию этого топлива, имеющего заметные преимущества, не прекращается.

К преимуществам топлива U-Mo, по сравнению с UO₂, можно отнести:

- более высокую теплопроводность;
- повышение теплопроводности с увеличением температуры;
- повышенную ураноемкость за счет более высокой плотности материала;
- более низкую температуру топлива при работе на мощности;
- меньшее количество запасенного тепла за счет низкой теплоемкости.

Успешные реакторные испытания опытной партии укороченных твэлов уран-молибденового топлива типа ПЭБ (плавающий энергетический блок) в реакторе МИР также привлекли особое внимание к этому топливу. Топливная композиция представляла собой гранулы из сплава OM 9, размещенные в пористой циркониевой матрице (20 % пор) [7-10]. Оболочки твэлов были изготовлены из сплавов Э110 и Э635 с диаметром, соответствующим применяемому в активной зоне плавучей атомной теплоэлектростанции «Академик Ломоносов». Несмотря на высокие тепловые потоки (до 450 Вт/см), твэлы достигли выгорания (60 МВт·сут/кгU) без значительного распухания и формоизменения. Это вызвало интерес к исследованию возможности использования данного топлива в реакторах ВВЭР и АСММ.

Однако топливо U-Mo также имеет ряд таких недостатков, как:

- возрастание ТКЛР с увеличением температуры;
- более низкую температуру плавления, чем UO₂.

Одновременно вызывает интерес использование разработанного в АО «ВНИИНМ» хромоникелевого сплава 42ХНМ (Cr - 42 масс %, Mo - 1,5 масс %, Ni — ост.). В России накоплен большой опыт его применения в качестве штатного конструкционного материала активных зон атомных ледоколов и транспортных реакторов, что делает сплав привлекательным и для использования в АСММ [11-14]. В последние годы этот сплав применяется также в качестве оболочечного материала поглощающих

стержней системы управления и защиты реакторов ВВЭР.

Известно, что сплав 42ХНМ обладает исключительно высокой коррозионной и радиационной стойкостью при облучении [15]. К его преимуществам можно также отнести:

- отсутствие пароводяной реакции с материалом оболочки;
- высокая радиационная стойкость;
- высокая коррозионная стойкость в среде теплоносителя;
- высокие прочностные и пластические характеристики;
- отсутствие склонности к межкристаллитному коррозионному растрескиванию.

Однако сплав 42ХНМ также имеет и недостатки:

- повышенное сечение поглощения нейтронов по сравнению с циркониевыми сплавами;
- высокотемпературное охрупчивание (ВТРО) в интервале температур 600-800 °С.

При рассмотрении возможности применения этого сплава необходимо это учитывать. Например, первый недостаток приводит к необходимости увеличения обогащения топлива по ²³⁵U для сохранения эффективности эксплуатации топлива.

В данной работе рассмотрено сочетание в одном твэле свойств оболочки из сплава 42ХНМ и высокоплотной топливной композиции U-Mo, что позволило бы увеличить длительность его топливного цикла без увеличения обогащения по ²³⁵U и компенсировать высокое сечение захвата сплава 42ХНМ. Кроме того, близкие значения температурных коэффициентов линейного расширения сплава 42ХНМ и высокоплотной топливной композиции U-Mo позволяют значительно снизить напряжения, возникающие при механическом контакте между топливом и оболочкой при подъемах и сбросах линейной мощности твэлов в режимах нормальной эксплуатации и нарушениях нормальной эксплуатации. Кроме того, их можно рассматривать в качестве перспективных ATF-материалов для использования в твэлах контейнерного типа для ВВЭР и АСММ.

С начала 2019 года проводятся реакторные испытания экспериментальных твэлов с оболочкой из сплава 42ХНМ и топливом U-Mo в реакторе МИР [15-18]. На данный момент запланировано поэтапное облучение и послереакторные исследования.

Для внедрения новых конструкций топлива в промышленную эксплуатацию необходимо решить много задач, таких как: определение дореакторных свойств материалов, изучение поведения экспериментальных твэлов в исследовательском реакторе; проведение опытно-промышленной эксплуатации твэлов на АЭС; подготовка и аттестация проектных кодов, расчетно-экспериментальное обоснование твэлов новой конструкции [19].

В данной статье представлены результаты разработки библиотек свойств сплавов 42ХНМ и U-Mo для кода СТАРТ-4А [20]. Библиотеки свойств материалов в виде корреляций и моделей имплементированы в код и верифицированы.

СВОЙСТВА ТОПЛИВА ИЗ СПЛАВА U-MO

Сплав OM9AO содержит молибден 9 масс. %, олово 0,15 масс. % Sn и алюминий 0,15 масс. % (здесь и далее U-Mo). Корреляции для описания свойств сплава получены

на основе обработки и анализа экспериментальных данных из открытых источников [5-6], [21-23].

Теплопроводность

Для определения теплопроводности сплава U-Mo подобрана функциональная зависимость (1) от температуры и выгорания:

$$\lambda(T, Bu) = \frac{1,94 \cdot 10^{-3} + 3,21 \cdot 10^{-5} \cdot T}{1 + 0,004 \cdot Bu}, \quad (1)$$

где: $\lambda(T, Bu)$ – коэффициент теплопроводности, Вт/(мм·К),

T – температура, К,

Bu – выгорание, МВт·сут/кг U.

Зависимость (1) верифицирована по экспериментальным данным для необлученного [21], [23] и облученного [24] сплава. Сравнение экспериментальных и расчетных значений теплопроводности представлены на рис. 1.

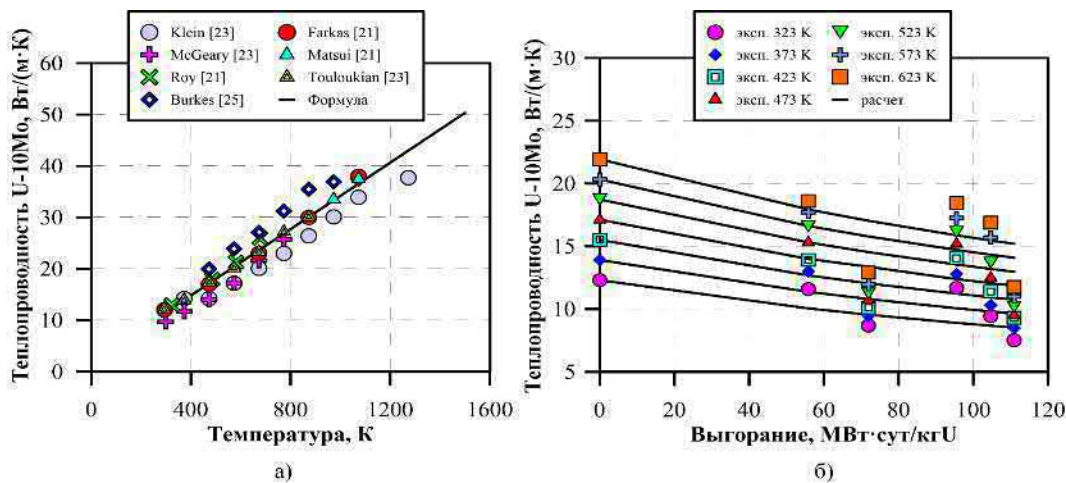


Рис. 1. Зависимость теплопроводности сплава U-Mo от температуры (а) и от выгорания (б)

Удельная теплоемкость

Зависимость теплоемкости сплава U-Mo от температуры получена аппроксимацией экспериментальных данных [21], [23], [25] и описывается квадратичным уравнением (2):

$$C_p(T) = 132,5 + 1,42 \cdot 10^{-2} \cdot T + 3,49 \cdot 10^{-3} \cdot T^2, \quad (2)$$

где: $C_p(T)$ – удельная теплоемкость, Дж/(кг·К),

T – температура, К.

Температурный коэффициент линейного расширения

Температурный коэффициент линейного расширения (ТКЛР) [21] выражается уравнением (3):

$$\alpha(T) = 7,91 + 1,21 \cdot 10^{-2} \cdot T, \quad (3)$$

где: $\alpha(T)$ – ТКЛР, 10^{-6} K^{-1} ;

T – температура, К.

Температура плавления U-Mo

Температура плавления топлива U-Mo составляет 1395 К [21].

Плотность

Зависимость плотности сплава U-Mo от весового содержания молибдена в сплаве пересчитана из зависимости плотности от атомного содержания Mo [21] с использованием правила Ноймана-Коппа и описывается уравнением (4):

$$\rho_{th \text{ н.у.}} = 19.05 - 0.20355 \cdot \omega, \quad (4)$$

где: $\rho_{th \text{ н.у.}}$ – теоретическая плотность при нормальных условиях, г/см³;
 ω – весовая доля молибдена, вес. %.

Ползучесть

Модель радиационной ползучести сплава U-Mo построена на основе анализа работы [22] и описывается уравнением (5):

$$\dot{\epsilon}_c = A_{UMo} \cdot \sigma \cdot \dot{f}, \quad (5)$$

где: $\dot{\epsilon}_c$ – скорость ползучести сплава U-Mo, 1/с;
 σ – интенсивность напряжений в оболочке, МПа;
 $A_{UMo} = 5 \cdot 10^{23}$ – коэффициент ползучести, мм³ / (деления·МПа);
 \dot{f} – плотность делений, деления/(мм³·с).

Модуль Юнга

На основании данных [21] значение модуля Юнга составляет 85 ГПа.

Распухание

Зависимость распухания топлива U-Mo от выгорания получена на основе анализа модели Kim Y.S. [26] (рис. 2).

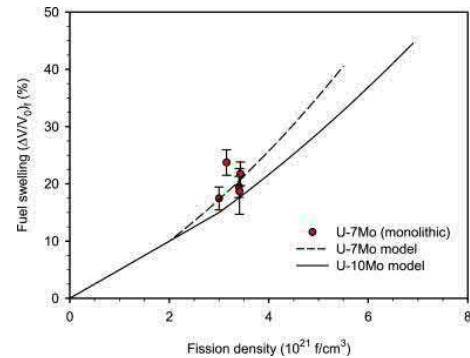


Рис. 2. Зависимость распухания топлива U-Mo от плотности делений [26]

Зависимость распухания U-Mo от выгорания принята линейной и описывается формулой (6):

$$\frac{\Delta V}{V} (Bu) = 0.0217 \cdot Bu, \quad (6)$$

где $\frac{\Delta V}{V}$ – относительное изменение объема, %;
 Bu – выгорание, МВт·сут/кгU.

На основе представленных свойств сплава U-Mo разработана библиотека свойств для кода СТАРТ-4А.

БИБЛИОТЕКА СВОЙСТВ СПЛАВА 42ХНМ

Для сплава 42ХНМ на основе анализа данных [11-18], на основе имеющихся данных, полученных в АО «ВНИИНМ», разработаны зависимости от температуры следующих свойств:

- теплопроводность;
- удельная теплоемкость;
- ТКЛР;
- температура плавления;
- плотность;
- модуль Юнга;
- ползучесть.

Для получения функциональной зависимости радиационной ползучести сплава 42ХНМ от параметров облучения были проанализированы результаты экспериментов, проведенных специалистами АО «ГНЦ НИИАР» с облученными в реакторе БОР-60 трубками из 42ХНМ под давлением. Экспериментальное облучение трубок было смоделировано кодом СТАРТ-4А для разработки и верификации корреляции для ползучести сплава.

Корреляции для указанных свойств сплава 42ХНМ включены в библиотеку для кода СТАРТ-4А.

ТЕСТИРОВАНИЕ БИБЛИОТЕК СВОЙСТВ

Корреляции для описания свойств сплавов 42ХНМ и U-Mo верифицированы по результатам исследований и измерений, проведенных в АО «ВНИИНМ», и по данным из открытых источников.

Проведена первичная верификация [27] кода СТАРТ-4А по результатам первых этапов облучения экспериментальных твэлов с оболочкой размером $\varnothing 9,1 \times 8,24$ мм из сплава 42ХНМ и таблеточным топливом размером $\varnothing 8,1 \times 2,3$ мм из U-Mo в реакторе МИР [28]. Верификация проводилась на экспериментальных твэлах, достигших выгорания 5,3 МВт·сут/кгU, 8,6 МВт·сут/кгU и 17,2 МВт·сут/кгU. Сопоставление расчетных и экспериментальных данных при первичной верификации показало удовлетворительное совпадение расчетных и экспериментальных данных, что подтверждает корректность используемых в коде СТАРТ-4А библиотек свойств сплава U-Mo и сплава 42ХНМ.

В дальнейших работах будут подробно описаны результаты расширенной верификации расчетного кода СТАРТ-4А и результаты расчетных исследований поведения ATF-твэлов для легководных реакторов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработаны библиотеки свойств, позволяющие проводить расчетные исследования поведения твэлов с перспективными материалами оболочки и топлива для реакторов ВВЭР и АСММ на основе сплавов 42ХНМ и U-Mo. Проведена первичная верификация кода СТАРТ-4А по результатам первых этапов облучения экспериментальных твэлов с оболочкой из сплава 42ХНМ и таблеточным топливом из сплава U-Mo в реакторе МИР. Получены удовлетворительные результаты, подтверждающие корректность разработанных библиотек свойств.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Loch L. D., Engle G. B., Snyder M. J., Duckworth W. H., *Survey of Refractory Uranium Compounds, Tech. Rep. / Battelle Memorial Institute. – 1956. – #BMI-1124.*
2. Gomes D. S., Silva A. T., Abe A. Y., Muniz R. O. & Giovedi C. *High density fuels using dispersion and monolithic fuel / International Nuclear Atlantic Conference. – Belo Horizonte, 2017.*
3. Izhutov A. L., Iakovlev V. I., Novoselov A. E. *Comparative analysis of structural changes in U-Mo dispersed fuel of full-size fuel elements and mini-rods in irradiation in the MIR reactor / Nucl. Eng. And Tech. – vol. 45. – no. 7. – pp. 859-870. – 2013.*
4. *National Research Council (US) Committee on Medical Isotope Production Without Highly Enriched Uranium / Medical Isotope Production without Highly Enriched Uranium. – Washington (DC): National Academies Press (US), 2009.*
5. Калашников В. В., Титова В. В., Сергеев Г. В., Самойлов А. Г. *Уран-молибденовые сплавы в реакторостроении / Атомная Энергия, 1958. – т. 5. – № 4. – с. 421-431.*
6. Титова, В. В. и др. *Сплавы системы уран-молибден (до 10-12 мас.% Мо) как перспективное высокоплотное топливо ядерных реакторов / Аналитический обзор результатов исследований, выполненных во ВНИИНМ в 1946-1986 гг.*
7. Ижухов А. Л., Шишин В. Ю., Шельдяков А. А., Яковлев В. В., Кулаков Г. В., Коновалов Ю. В., Савченко А. М. *Поведение под облучением дисперсионного топлива с матрицами из циркониевых сплавов / Сборник трудов АО «ГНЦ НИИАР». – № 4. – с. 19-31. – 2020.*
8. Савченко А. М., Коновалов Ю. В., Кулаков Г. В., Маранчак С. В., Ершов С. А., Майников Е. В., Козлов А. В., Шишин В. Ю., Шельдяков А. А., Яковлев В. В. *Испытания дисперсионных твэлов с жаропрочным сердечником с регулируемой пористостью для атомных станций малой мощности / Атомная энергия. – т. 131, – № 6. – с. 324-327. – 2021.*
9. Savchenko A., Karpyuk L., Konovalov Y., Kulakov G., Maranchak S., Izhutov A., Shishin V. *New Concept of METMET Fuel Element for Use in Floating Power Units and Low Power Nuclear Reactors / in Proceedings of TopFuel-2021 Conference. – Santander. – Spain, 2021.*
10. Карпюк Л. А., Савченко А. М., Коновалов Ю. В., Кулаков Г. В., Маранчак С. В., Ершов С. А., Майников Е. В., Козлов А. В., Шишин В. Ю., Шельдяков А. А., Яковлев В. В. *Особенности поведения дисперсионного топлива METMET под облучением. / Вопросы Металловедения. – т. 111. – № 3. – с. 148-155. – 2022.*

11. Солонин М. И., Кондратьев В. П., Вотинов С. Н. и др. Сплав ХНМ-1 как перспективный материал для элементов конструкций ядерных и термоядерных реакторов с водным теплоносителем / Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы. – т. 52. – № 1. – с. 13-20. – 1995.
12. Solonin M.I., Kondrat'ev V.P., Rechitsky V.N. et al. XHM-1 alloy as a promising structural material for water-cooled fusion reactor components, *Nucl / Mater.* – Vols. 233-237. – pp. 586-591. – 1996.
13. Solonin M.I., Kondrat'ev V.P., Rechitsky V.N. et al. Cr—Ni alloys for fusion reactors / *Ibid.* – Vols. 258-263. – pp. 1762-1766. – 1998.
14. Ватулин А. В., Кондратьев В. П., Речицкий В. Н. и др. Исследование коррозионной и радиационной стойкости никель-хромового сплава «Бочвалой» / *Металловедение и термическая обработка металлов.* – № 11. – с. 19-24. – 2004.
15. Savchenko A., Ivanov V., Novikov V. et al., *Review of A.A. Bochvar Institute Activities in Developing Potentially Accident Tolerant Fuel for Light Water Reactors / in Proceedings of the TopFuel-2015 Conference, Zurich, Switzerland, 13-18 September 2015.*
16. Карпюк Л. А., Савченко А. М., Леонтьева-Смирнова М. В., Кулаков Г. В., Коновалов Ю. В. / Перспективы применения стальных оболочек для твэлов реакторов типа ВВЭР в рамках концепции топлива, устойчивого к аварийным ситуациям / *Атомная энергия.* – т. 128. – № 4. – с. 203-208. – апрель 2020.
17. Карпюк Л. А., Новиков В. В., Кулаков Г. В., Коновалов Ю. В., Леонтьева-Смирнова М. В., Голубничий А. А., Иванов С. И., Макаров Ф. В., Глебов А. В. Сплав 42ХНМ и карбид кремния как материал оболочек твэлов, устойчивых к авариям / *Атомная энергия.* – т. 130. – № 4. – с. 211-215. – 2021.
18. Кулаков Г. В., Ватулин А. В., Ершов С. Н., Карпюк Л. А., Коновалов Ю. В., Косауров А. О., Леонтьева-Смирнова М. В., Речицкий В. Н. Перспективы использования хромоникелевого сплава 42ХНМ в реакторах разного типа / *Атомная энергия.* – т. 130. – № 1. – с. 5. – 2021.
19. НП-094-15. Основные требования к обоснованию прочности и термомеханического поведения тепловыделяющих сборок и тепловыделяющих элементов в активной зоне водо-водяных энергетических реакторов / Москва: ФБУ «НТЦ ЯРБ». – 2015.
20. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №RU 2021610089. СТАРТ-4А / А.В. Медведев, В.И. Кузнецов, А.С. Еременко и др. – Заявка №2020664482. Дата регистрации 17.11.2020 г. Дата публикации 12.01.2021.
21. Rest J. et al. *U-Mo Fuels Handbook / Argonne National Laboratory.* – 2006.
22. Mao X., Jian X., Zhang J., Yan F. Effects of U-Mo Irradiation Creep Performance on the Thermo-Mechanical Coupling Behavior in U-Mo/Al Monolithic Fuel Assemblies / *Front. Energy Res.* – 2021.
23. Burkes D. E., Mickum G. S., Wachs D. M. *Thermophysical Properties of U-10Mo alloy / Argonne National Laboratory.* – 2010.
24. Burkes D. E., Schwerdt I. J. et al., *Thermal properties of U-Mo alloys irradiated under high fission power density / Journal of Nuclear Materials.* – v. 547. – 2021.
25. Burkes D.E., Papesch C.A. et al. *Thermo-physical properties of DU–10 wt.% Mo alloys / Journal of Nuclear Materials.* – v. 403. – n. 1. – pp. 160-166. – 2010.
26. Yeon Soo Kim, G.Y. Jeong, J.M. Park, A.B. Robinson. *Fission induced swelling of U–Mo/Al dispersion fuel / Journal of Nuclear Materials.* – volume 465. – pp. 142-152. – 2015.
27. Кузнецов В.И., Еременко А.С., Демьянов П.Г. и др. Реакторные испытания ATF-твэлов: верификация кода СТАРТ-4А по результатам послереакторных исследований / Тезисы доклада на конференции XII международная конференция по реакторному материаловедению, посвященная 60-летию материаловедческого комплекса АО «ГНЦ НИИАР», – Димитровград, 2024. – с. 335-336.
28. Шельдяков А.А., Ижutow А.Л., Звир Е.А. и др. Результаты экспериментальных исследований ATF-твэлов, испытанных в реакторе МИР / Тезисы доклада на конференции XII международная конференция по реакторному материаловедению, посвященная 60-летию материаловедческого комплекса АО «ГНЦ НИИАР» – Димитровград, 2024. – с. 128-131.

Сведения об авторах:

Демьянов П. Г. – руководитель группы экспериментальной поддержки технических проектов, Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», PGDemjanov@bochvar.ru

Ханков А. А. – инженер 2-ой кат. группы экспериментальной поддержки технических проектов, Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», AAKhankov@bochvar.ru

Королева А. И. – младший научный сотрудник группы экспериментальной поддержки технических проектов, Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», AIIKoroleva@bochvar.ru

Савченко А. М. – главный эксперт управления ученого секретаря, Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», AMSavchenko@bochvar.ru

Дергунова Е. А. – ведущий научный сотрудник отдела аспирантуры, Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», EADergunova@bochvar.ru

Карпюк Л. А. – генеральный директор, Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», LAKarpyuk@bochvar.ru.

Поступила в редакцию / Received 17.12.2024

Поступила после рецензирования / Revised 13.01.2025

Принята к публикации / Accepted 31.01.2025