

## МАТЕРИАЛЫ РЕАКТОРОВ НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ

УДК 621.039

### О ПЕРСПЕКТИВАХ РАЗРАБОТОК И ПРОИЗВОДСТВА ПОГЛОЩАЮЩИХ ЭЛЕМЕНТОВ В УКРАИНЕ

*И.М. Неклюдов, В.С. Красноруцкий, В.Р. Татарин, Н.Н. Белаи*  
*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,  
Харьков, Украина*

Представлены результаты анализа разработок вариантов конструкции перспективных пэлов, процессов заполнения оболочек порошком карбида бора, герметизации оболочек пэлов, изготовления и исследования поглощающих материалов в виде таблеток из гафната диспрозия, стержней из металлического гафния и результаты исследований поведения разработанных соединений и макетов пэлов в условиях, имитирующих аварийные ситуации. Приведены результаты наработок по технологии и организации производства пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ. Проанализированы достижения и возможности организации в Украине промышленного производства стержней из гафниевого сплава ГФЭ-1 для пэлов ПС СУЗ реактора ВВЭР-1000.

#### ВВЕДЕНИЕ

При организации собственного производства ядерного топлива в Украине является целесообразным создание производства поглощающих стержней для системы управления и защиты (ПС СУЗ) энергетических реакторов, которыми могут комплектоваться тепловыделяющие сборки (ТВС), поставляемые для эксплуатации в реакторах ВВЭР-1000.

Для развития данного направления Украина обладает необходимыми материальными ресурсами, имеет достаточный научный и производственный потенциал. Перспектива создания собственного производства поглощающих элементов (пэлов) и изделий с их использованием подкрепляется и необходимостью обеспечения поглощающими вставками (ПВ) отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) при хранении в вентилируемых контейнерах сухого хранилища (ВКХ СХ), расположенного на площадке Запорожской АЭС.

Основными направлениями по усовершенствованию пэлов ПС СУЗ водо-водяных реакторов являются [1-4]:

- увеличение длительности и надежности работы пэлов за счет использования более совершенных конструкций, радиационно- и коррозионно-стойких поглощающих и конструкционных материалов;
- повышение физической эффективности пэлов в результате использования новых поглощающих материалов и композиций;
- сохранение целостности пэлов при возникновении аварийных ситуаций.

Наиболее перспективным решением повышения надежности и физической эффективности ПС СУЗ считается переход на комбинированное использование поглощающих материалов. В большинстве разрабатываемых конструкций пэлов в нижней части, расположенной в зоне наиболее интенсивного облучения, предлагаются для применения материалы, взаимодействующие с нейтронами по реакции  $(n, \gamma)$  ( $Du_2O_3 \cdot HfO_2$ ,  $Du_2O_3 \cdot TiO_2$ , Hf, HfB<sub>2</sub> и т. д.), а в верхней – соответственно материалы, взаимодействующие

по реакции  $(n, \alpha)$  ( $B_4C$ ) [3, 4]. Из исследованных поглощающих материалов, взаимодействующих с нейтронами по реакции  $(n, \gamma)$ , самыми эффективными считаются сплавы гафния и композиции на основе гафната диспрозия. По мнению специалистов, их использование в нижней части пэлов обеспечит повышение эксплуатационного ресурса работы ПС СУЗ до 20...30 лет [1, 2].

Для обеспечения полной загрузки ВКХ СХОЯТ и соблюдения требований по ядерной безопасности отработавшие тепловыделяющие сборки (ОТВС) в бассейне выдержки перед перемещением в сухое хранилище комплектуют ПС СУЗ и стержнями выгорающего поглотителя (СВП), которые исчерпали проектный ресурс работы в реакторе. В связи с недостаточным количеством отработавших ПС СУЗ и СВП для комплектации ОТВС дополнительно используют ПВ, разработанные и изготавливаемые в настоящее время на опытном участке в НТК ЯТЦ ННЦ ХФТИ [5].

По направлению совершенствования поглощающих материалов и элементов в НТК ЯТЦ ННЦ ХФТИ в течение последнего десятилетия выполнен значительный объем работ. Разработаны варианты конструкций пэлов для ПС СУЗ реакторов ВВЭР-1000 и ПВ ВКХ СХОЯТ, отвечающие современным требованиям, и проработаны схемы их изготовления. Выполнен комплекс исследований по изучению: влияния режимов виброуплотнения на значения плотности карбида бора в оболочках пэлов; процессов образования неразъемных соединений в конструкциях пэлов, кинетики синтеза и изменения фазового состава материалов на основе гафната и титаната диспрозия; влияния режимов синтеза из растворов азотнокислых солей на характеристики нанопорошков из оксида гафния, оксида диспрозия и гафната диспрозия; влияния режимов спекания и вакуумного горячего прессования на физико-механические свойства таблеток поглощающих материалов; влияния режимов термомеханической обработки на структуру и текстуру стержней из гафниевого сплава ГФЭ-1; поведения макетов пэлов

разработанных вариантов в условиях, имитирующих аварийные ситуации.

Результаты проведенных исследований позволили разработать технологические процессы изготовления пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ и пэлов для ПС СУЗ реактора ВВЭР-1000.

## 1. ВАРИАНТЫ КОНСТРУКЦИЙ И СХЕМЫ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ПЭЛОВ

Определяющим фактором при конструировании пэлов является то, какие поглощающие материалы и в каком исполнении (порошок, таблетки, стержень) планируется использовать. Большинство перспективных конструкций разработано под применение в качестве  $n, \alpha$ -поглотителя карбида бора в виде порошка (ВВЭР-1000) или таблеток (PWR), а в качестве  $n, \gamma$ -поглотителя – таблеток или порошка гафната и титаната диспрозия, сплавов на основе металлического гафния в виде стержней, таблеток из диборида гафния. Например, на сегодняшний день для ПС СУЗ реактора ВВЭР-1000 применяется вариант пэлов, в котором в верхней его части используется порошок  $B_4C$ , а в нижней – порошок титаната диспрозия [1].

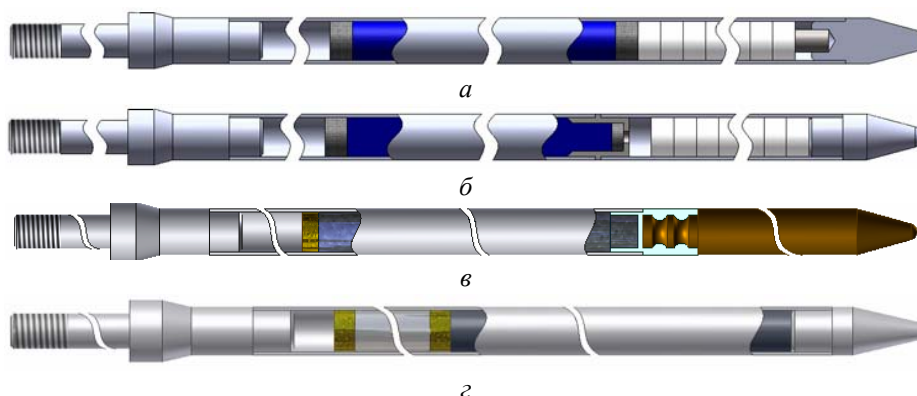


Рис. 1. Варианты разработанных пэлов для ПС СУЗ и ПВ ВКХ СХОЯТ: а –  $n, \gamma$ -поглотитель выполнен в виде столба таблеток из  $Dy_2O_3 \cdot TiO_2$  или  $Dy_2O_3 \cdot HfO_2$ , который в верхней части отделен от  $B_4C$  перегородкой, а в нижней – упирается в фиксатор; б – оболочка пэлов выполнена из двух частей, а столб таблеток  $n, \gamma$ -поглотителя расположен в отдельной герметичной оболочке; в –  $n, \gamma$ -поглотитель изготовлен из сплава ГФЭ-1 в виде стержня  $\varnothing 8,2$  мм; г – пэлы с поглотителем в виде порошка  $B_4C$  для поглощающих вставок

В верхней части пэлов находится порошок  $B_4C$ , а в нижней, которая является основной его рабочей частью, расположены таблетки, выполненные из композиций на основе гафната или титаната диспрозия.

Отличительной особенностью данных конструкций от известных является то, что в первом случае (см. рис. 1,а) столб таблеток  $n, \gamma$ -поглотителя в верхней части отделен от порошка  $B_4C$  газопроницаемой перегородкой, способной деформироваться при определенных усилиях, а нижней частью упирается в фиксатор, расположенный в компенсационном объеме оболочки со стороны нижней концевой детали и имеющий заданный коэффициент жесткости. Использование указанных элементов конструкции позволяет компенсировать усилия на оболочку пэлов, возникающие при формоизменении поглощающих

Для реакторов PWR в качестве перспективных рассматриваются конструкции, в которых верхняя часть включает таблетки  $B_4C$ , а нижняя – стержень из сплава Ag-15 вес.% In-5 вес.% Cd [6, 7] или гафния [2].

В НИЦ ХФТИ длительный период времени традиционно ведутся работы по поглощающим материалам и поглощающим элементам для различных типов ядерных реакторов.

В частности, в НТК ЯТЦ НИЦ ХФТИ на сегодняшний день разработано несколько вариантов конструкции пэлов и способов их изготовления для применения в реакторах ВВЭР-1000 и ВКХ СХОЯТ, в которых в качестве  $n, \alpha$ -поглотителя нейтронов использован порошок карбида бора, а в качестве  $n, \gamma$ -поглотителей – композиции на основе гафната или титаната диспрозия, сплава гафния ГФЭ-1 [8–15].

Разработанные варианты конструкции пэлов, в которых используются  $n, \gamma$ -поглотители в виде таблеток (рис. 1,а,б), включают оболочку, загерметизированную верхней и нижней концевыми деталями, внутри которой расположены два типа поглотителей нейтронов.

материалов в процессе длительной работы в реакторе.

Во втором варианте конструкции пэлов (см. рис. 1,б) оболочка изготовлена из двух частей, соединенных между собой через переходник. Между переходником и столбом таблеток  $n, \gamma$ -поглотителя выполнен компенсационный зазор. При этом объемы двух частей оболочек могут быть отделены герметично одна от другой или соединены между собой через отверстие, выполненное в днище переходника.

Изготовление оболочки пэлов из двух частей позволяет использовать материалы с различными свойствами, что обеспечивает выполнение ими различных функций. Например, нижнюю часть оболочки, которая находится в процессе работы в реакторе под действием значительного нейтронного потока, можно изготавливать из радиационно-стойких спла-

вов, таких как хромоникелевый сплав (ЭП-630У), сплав гафния (ГФЭ-1) или сплавы циркония (Е635, Zirlo, М5, Э125), которые обеспечат длительную и надежную работу пэлов. Наличие герметичной перемычки (переходника) в конструкции пэлов позволит локализовать нижнюю часть пэлов, работающую при интенсивном нейтронном облучении, от верхней, содержащей порошок В<sub>4</sub>С, в случае ее разгерметизации.

Вариант разработанной конструкции пэлов, приведенный на рис. 1,в, обеспечивает использование гафния в виде металлического стержня диаметром, равным диаметру оболочки (8,2 мм). Согласно данным работы [16] при использовании гафниевого стержня Ø 8,2 мм его начальная относительная эффективность поглощения нейтронов будет составлять ~ 0,95 эффективности поглощения нейтронов порошком карбида бора, при его использовании в оболочке внутренним диаметром 7,0 мм. Наличие гафниевого стержня в нижней части пэлов длиной около 0,5 м позволяет вывести оболочку из области интенсивного облучения нейтронами и, тем самым, продлить срок его эксплуатации. В вариантах пэлов с оболочкой из нержавеющей стали или никелевого сплава ЭП-630У для соединения оболочки с гафниевым стержнем используется переходной элемент специальной конструкции, который обеспечивает надежное их соединение. Перспективным направлением повышения надежности пэлов, в нижней части которых применяется гафний, является использование оболочек из сплавов на основе циркония. Это позволяет повысить надежность работы поглощающего элемента за счет исключения образования легкоплавких фаз материала оболочки как с гафнием, так и с карбидом бора при высоких температурах, имеющих место в аварийных ситуациях. В данных конструкциях оболочка соединяется непосредственно с гафниевым стержнем без использования переходного элемента.

## 2. РАЗРАБОТКА И ИЗГОТОВЛЕНИЕ ПЭЛОВ ДЛЯ ПВ ВКХ СХОЯТ

При разработке пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ за базовый вариант был принят вариант конструкции по чертежу 2145, широко использовавшийся ранее в ПС СУЗ реактора ВВЭР-1000. В результате доработки этого варианта были созданы пэлы конструкции, приведенной на рис. 1,г.

В разработанных технологических процессах изготовления пэлов для ПС СУЗ (см. рис. 1,а,б,в) операции, связанные с подготовкой порошка карбида бора, заполнения им оболочек до плотности  $\geq 1,7 \text{ г/см}^3$ , изготовления комплектующих, сборки, заполнения гелием и герметизации пэлов, контроля герметичности сварных соединений, выходного контроля пэлов, упаковки в транспортные контейнеры, являются такими же, как и для пэлов ПВ ВКХ СХОЯТ (см. рис. 1,г).

При производстве пэлов для ПС СУЗ к вышеприведенным операциям добавляются операции по изготовлению и контролю таблеток или стержней из материалов, взаимодействующих с нейтронами по

реакции ( $n, \gamma$ ), и соединение частей с этими материалами с частью оболочки, включающей В<sub>4</sub>С. Поэтому при реализации технологических процессов на опытном участке в НТК ЯТЦ ННЦ ХФТИ при производстве пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ указанные технологические процессы были отработаны вначале на опытных пэлах, а затем применены на промышленных партиях изделий.

К наиболее ответственным технологическим операциям при изготовлении пэлов относятся операции по заполнению и контролю равномерности распределения поглощающих материалов в оболочке, герметизации оболочки, контролю качества сварных соединений.

При разработке технологии изготовления пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ ставили задачу сделать ее простой, дешевой, экологически чистой, использовать материалы отечественного производства при сохранении высокого качества изделий.

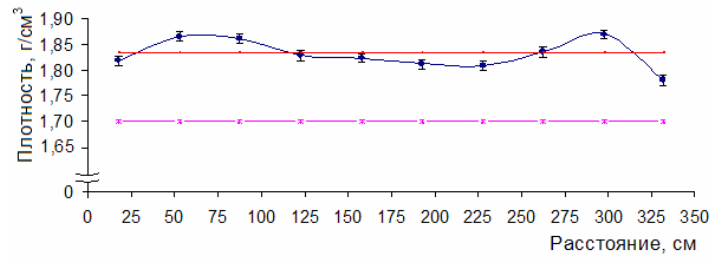
В процессе отработки технологии заполнения оболочек в сборе В<sub>4</sub>С выполнен комплекс исследований и испытаний, в ходе которых решались следующие задачи: выбор оптимального соотношения между крупной и мелкой фракциями карбида бора; оптимизация режимов виброуплотнения; определение характера распределения плотности В<sub>4</sub>С и соотношения между фракциями по длине активной зоны (АЗ) пэлов. Соотношение между крупной (- 1,0+0,315 мм) и мелкой (F240) фракциями карбида бора (ТУ У 24.1-00222226-047:2005; ISO 9001:2000 TNO «Certification») в экспериментах варьировали в широком диапазоне. В результате экспериментов и технологических проработок установлено, что из рассмотренных вариантов смесей В<sub>4</sub>С наиболее перспективной в достаточно широком диапазоне частот виброуплотнения является смесь с соотношением крупной и мелкой фракций, равным 60...70 % на 40...30 %. Использование смеси данного состава обеспечивает заданные средние значения плотности В<sub>4</sub>С в оболочке пэлов и сравнительно высокую скорость заполнения. Например, после 8...10 мин работы на частоте в интервале 100...150 Гц достигается плотность В<sub>4</sub>С на этой смеси, составляющая 1,82...1,85 г/см<sup>3</sup>. При этом обеспечивается достаточно равномерное распределение плотности В<sub>4</sub>С по высоте столба поглотителя (рис. 2,б), превышающее минимальное значение плотности поглотителя, заданное в технических условиях ( $\geq 1,7 \text{ г/см}^3$ ).

При отработке процессов герметизации сварных соединений оболочек пэлов с концевыми деталями важной задачей являлось исследование параметров сварных соединений, полученных на установке СА-281, традиционно используемой в атомной промышленности (производство ОАО «НИКИМТ-Атомстрой», Россия).

Результаты исследований параметров сварных швов в зависимости от режимов сварки свидетельствуют, что при использовании данной сварочной установки значения ширины шва и глубины провара имеют удовлетворительную величину (см. рис. 2,г). Провар на всю толщину оболочки (0,6 мм) обеспечивается при значениях погонной энергии 40 Дж/мм (см. рис. 2,д).



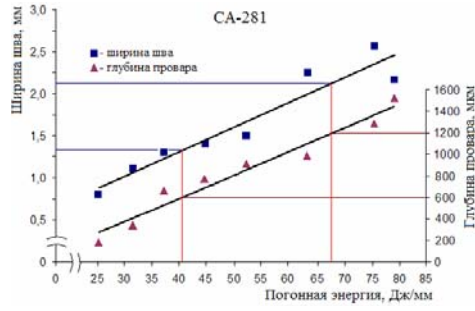
а



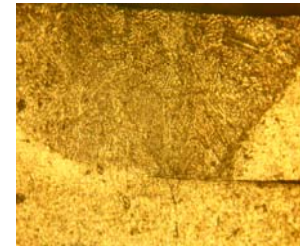
б



в



г



д

Рис. 2. Используемое оборудование и результаты исследований пэлов ПВ ВКХ СХОЯТ:

а – вибраторный электродинамический стенд ВЭДС-100МК; б – зависимость распределения плотности  $V_4C$  от расстояния по высоте АЗ пэлов; в – участок сборки и сварки пэлов; г – зависимости ширины шва и глубины провара от погонной энергии; д – структура сварного шва

Увеличение погонной энергии до 67 Дж/мм приводит к проплавлению металла в сварном соединении на двойную толщину оболочки (1,2 мм). Полученные результаты подтверждают возможность успешного применения установки СА-281 для герметизации осеботонкостенных оболочек пэлов из нержавеющей стали.

На основании результатов технологических работ и исследований для обеспечения производства пэлов для комплектации ПВ разработан технологический процесс, изготовлены оригинальные устройства и приспособления, создан на площадях ННЦ ХФТИ опытный участок производительностью не менее 30 изделий в смену. В период с 2009 по 2012 годы на данном опытном участке изготовлено и передано для комплектации ПВ более 2200 изделий, которые в составе 122 ПВ размещены в сухом хранилище ЗАЭС.

В 2011 году при участии НТК ЯТЦ начата работа по созданию участка по изготовлению пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ производительностью более 2000 изделий в год на заводе НСО и Т ОП «Атомэнергомаш» ГП НАЭК «Энергоатом». В ОП «Атомэнергомаш» передана в полном объеме техническая документация на изготовление пэлов. В настоящее время на заводе ведутся работы по освоению технологических процессов и изготовлению опытных партий пэлов.

Организация производства пэлов для ПВ ВКХ СХОЯТ рассматривается как первый этап изготовления пэлов в Украине. На втором этапе возможно организовать на заводе НСО и Т дополнительную линию по изготовлению пэлов для ПС СУЗ реактора ВВЭР-1000 мощностью более 1500 изделий в год. Успешная работа этих участков и достижения кол-

лектива завода НСО и Т по изготовлению комплектующих для ПВ и ПС СУЗ могут обеспечить потребности атомной энергетики Украины по данным изделиям в полном объеме.

### 3. ПОЛУЧЕНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ ТАБЛЕТОК ГАФНАТА ДИСПРОЗИЯ

Наличие в составе гафната диспрозия таких элементов, как Dy и Hf, имеющих высокие сечения поглощения нейтронов, а также возможность в системе  $Dy_2O_3-HfO_2$  в широкой области концентраций фиксировать кубический твердый раствор структуры типа флюорита, обладающий повышенной радиационной стойкостью, ставит его в ряд наиболее перспективных поглощающих материалов [17, 18]. Для изготовления таблеток гафната диспрозия известно использование таких методов, как спекание на атмосфере воздуха, вакуумное спекание и горячее прессование.

Сотрудниками ННЦ ХФТИ выполнен ряд работ по отработке технологических процессов получения таблеток гафната диспрозия с использованием метода квазиизостатического горячего прессования (метод электроконсолидации) и вакуумного спекания [19-22]. Проработаны три схемы спекания. В этих схемах основные подготовительные операции такие, как приготовление смесей, механическое перемешивание порошков, введение пластификатора, гомогенизация порошка, формование таблеток, отгонка пластификатора, были одинаковыми. Отличие заключалось в том, что на конечной стадии использовали разные технологические операции: вакуумное спекание сырых таблеток из порошковых смесей оксидов гафния и диспрозия (схема П); вакуумное спекание сырых таблеток из порошка гафната дис-



прозия, полученного путем измельчения заготовок после предварительного спекания смеси оксидов гафния и диспрозия при температуре 1450 °С (схема II); квазиизостатическое горячее прессование в среде сфероидизированного графитового порошка (схема III). Результаты исследования изменения плотности таблеток гафната диспрозия в зависимости от температуры вакуумного спекания (схемы I и II) длительностью 3 часа и горячего прессования (схема III) при давлении 45 МПа и выдержке 20 мин. при заданной температуре приведены на рис. 3.

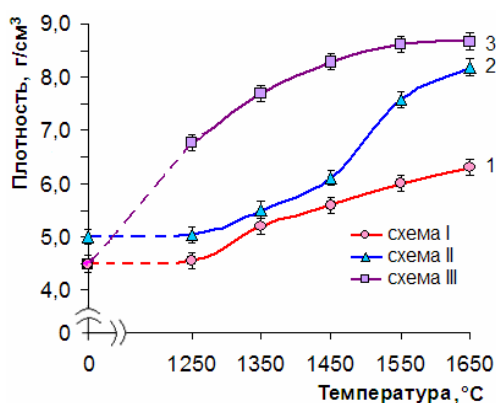


Рис. 3. Зависимость плотности таблеток, изготовленных из порошка гафната диспрозия от температуры спекания: 1 – схема I; 2 – схема II; 3 – схема III

При изготовлении таблеток по схеме I в исследуемом интервале температур (1250...1650 °С) наблюдается низкая скорость спекания. Максимальные значения кажущейся плотности полученных таблеток не превышают 6,3 г/см³.

При использовании схемы II после спекания при температурах >1450 °С наблюдается заметное увеличение плотности таблеток, которая при повышении температуры спекания до 1650 °С составляет 8,2...8,3 г/см³ (пористость < 6 %). Структура таблеток является мелкозернистой (величина зерна – 1...5 мкм).

Наиболее плотные и прочные таблетки гафната диспрозия в исследуемом диапазоне температур получены при использовании горячего прессования (схема III). Уже при температуре 1450 °С их плотность превышает 8,2 г/см³, а при 1650 °С составляет ~8,7 г/см³ (см. рис. 3). Ускорение процесса спекания при использовании схемы III обусловлено тем, что приложенное извне давление способствует увеличению общей поверхности контакта между зернами за счет перемещения частиц друг относительно друга и вызывает пластическую деформацию кристаллической решетки прессуемого вещества [23].

Результаты рентгенографических исследований материалов таблеток, изготовленных по схеме I, показали, что после спекания в течение трех часов при температурах ≥ 1450 °С происходит формирование однофазной структуры  $Hf_{1-x}Dy_xO_y$  в материале таблеток, приготовленных как из исходных оксидов

гафния и диспрозия, так и из композиций более сложных составов [21].

При использовании горячего прессования (схема III) процесс образования фазы  $Hf_{1-x}Dy_xO_y$  начинается при температурах ≥ 1250 °С. Повышение температуры до 1450 °С приводит к образованию стабильной однофазной структуры  $Hf_{1-x}Dy_xO_y$ , с кубической решеткой, относящейся к флюоритовому типу структуры. Дальнейшее повышение температуры прессования до 1650 °С не приводит к изменению фазового состава материала таблеток [20, 21].

Величина зерен в материале таблеток, полученных горячим прессованием при температурах 1250...1450 °С, равняется 3...8 мкм. Увеличение температуры прессования до 1650 °С приводит к формированию более крупнозернистой структуры (7...25 мкм), что обусловлено интенсификацией процесса собирательной рекристаллизации при горячем прессовании.

После выбора наиболее оптимального состава композиций на основе гафната диспрозия, выбора оптимальной схемы изготовления, доведения технологии изготовления таблеток до полупромышленного уровня открывается перспектива их изготовления для производства пэлов ПС СУЗ реакторов ВВЭР-1000.

#### 4. РАЗРАБОТКА СХЕМЫ ИЗГОТОВЛЕНИЯ СТЕРЖНЕЙ ИЗ ГАФНИЯ

Для реализации производства изделий из гафния Украина обладает необходимыми запасами гафния, промышленным потенциалом и необходимыми технологическими проработками. Гафний является сопутствующим продуктом при производстве циркония и, как правило, в виде слитков и гидроксида гафния закладывается в государственный или отраслевой резерв [24]. С конца 80-х годов прошлого столетия Приднепровским химическим заводом (ныне ГНПП «Цирконий», Украина) освоено промышленное производство гафния марки ГФЭ-1 по технологии, заключающейся в кальциетермическом восстановлении тетрафорида гафния. За истекший период данный сплав в достаточной степени изучен. Изделия из сплава ГФЭ-1 в виде стержней, пластин и труб успешно прошли реакторные испытания [16]. Совместными усилиями ИФТТМ и НТК ЯТЦ ННЦ ХФТИ, ГНПП «Цирконий», ГП «Рубин», ГП НИТИ проработана схема изготовления стержней из сплава ГФЭ-1 применительно к использованию в поглощающих элементах реактора ВВЭР-1000 [24, 25].

Согласно разработанной технологии на начальном этапе гафний в виде слитков и оборотных отходов поступает на электронно-лучевую плавку. С целью уменьшения разнородности слитков и дополнительного рафинирования от кислорода выполняется вторичный электронно-лучевой переплав. В результате вторичной электронно-лучевой плавки получают слитки ~Ø 85...90 мм, длиной 1200 мм, материал которых имеет крупнозернистую структуру (величина зерна равняется 5...10 мм). Из слитков в результате токарной обработки получают заготовки под ковку в виде цилиндров диаметром

80...82 мм и высотой 135...145 мм. Заготовки проходят ультразвуковой контроль (дефектоскоп USN-52) на наличие дефектов (трещин, раковин, расслоений). Деформация слитков проводится либо ковкой в несколько этапов на пневматических молотах (МА4136) [24, 26], либо на радиально-обжимной машине (В004) [25]. В процессековки на кузнечном молоте либо обработки на радиально-обжимной машине происходит формирование структуры с размером зерен до ~45 мкм, зерна содержат двойники и скопление дислокаций. Для получения слабоструктурированных стержней из гафния с мелкозернистой структурой, обладающих высокой радиационной стойкостью, в работах [25, 27] рекомендуется использовать метод ротационнойковки (машины типа В-2122). Результаты исследований влияния термомеханической обработки на структуру и текстуру прутков из кальциетермического гафния, приведенные в работах [28, 29], свидетельствуют, что наиболее сильное влияние на состояние структуры и размер зерен оказывает температура деформации. Так, дальнейшая деформация при температурековки 950 °С не приводит к существенному изменению состояния структуры и уменьшению размера зерен. Понижение же температуры до 500 °С при степени деформации около 100 % обеспечивает уменьшение среднего размера зерна до ~9 мкм (рис. 4).

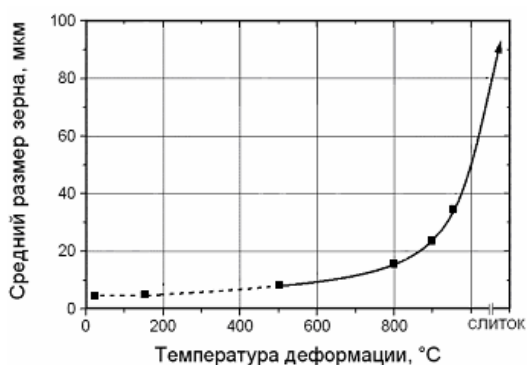


Рис. 4. Зависимость среднего размера зерна от температуры деформации [28, 29]

Снижение температурыковки до 150 °С приводит к увеличению степени наклепа, появлению более мелких фрагментов зерен, чем в предыдущем случае, и соответственно к снижению среднего размера зерна до ~6 мкм.

Радиальное обжатие прутка при температуре 950 °С от 20 до 9,5 мм вызывает формирование аксиальной текстуры. При этом плотность полюсов призматических плоскостей возрастает, а базисных – снижается. В случае снижения температурыковки до 500 °С наблюдается образование слабо выраженной призматической текстуры, которая при 150 °С заметно усиливается. Параметр Кёрнса стержней, деформированных при температурах: 950; 900; 800; 500 и 150 °С, соответственно равняется: 0,088; 0,157; 0,206; 0,255 и 0,173 (рис. 5), что свидетельствует о преимуществе деформирования при температуре 500 °С. С понижением температуры деформации происходит почти линейный рост предела

прочности и пластичности и снижение относительного удлинения [30]. Так снижение температурыковки с 900 до 20 °С приводит к увеличению предела прочности на 30 % и снижению относительного удлинения в 1,9 раза. Например, после деформации гафниевого прутка при 500 °С предел прочности ( $\sigma_b$ ), предел текучести ( $\sigma_{0,2}$ ) и относительное удлинение ( $\delta$ ) равняются: 650, 530 МПа и 11,5 %. Отжиг при температуре 800 °С в течение 1,5 ч приводит к снятию наклепа, снижению значений  $\sigma_b$  и  $\sigma_{0,2}$  соответственно до 580 и 425 МПа и увеличению  $\delta$  до 22 %, но не оказывает заметного влияния на изменение параметров анизотропии [27].

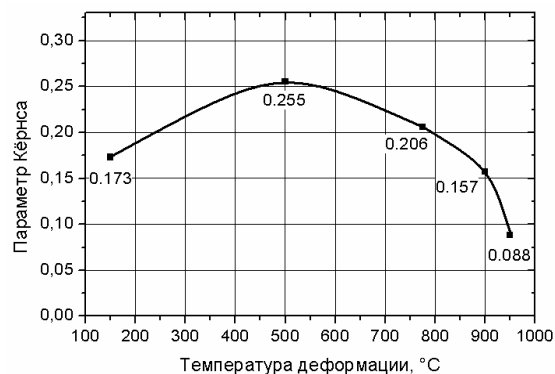


Рис. 5. Изменение ориентационного параметра Кёрнса стержней гафния в зависимости от температуры деформации [29]

Структура остается мелкозернистой. Величина зерна не превышает 20 мкм [28].

Таким образом, приведенные результаты свидетельствуют, что при кооперации ИФТТМ и НТК ЯТЦ и таких организаций, как ГНПП «Цирконий», ГП «Рубин», ГП НИТИ, возможно изготовление стержней из сплава ГФЭ-1 с высокими служебными характеристиками.

## 5. ИССЛЕДОВАНИЕ ЖИВУЧЕСТИ МАКЕТОВ ПЭЛОВ

При разработке новых вариантов пэлов к ним кроме увеличения ресурса работы и эффективности поглощения нейтронов предъявляются требования повышенной живучести в аварийных ситуациях. Основными факторами, ограничивающими живучесть пэлов в аварийных условиях, являются совместимость оболочек и поглощающих материалов с теплоносителем и между собой, деградация механических свойств при перегревах конструкционных материалов и сварных соединений и т.д.

Характер взаимодействия с оболочками пэлов рассмотренных поглощающих материалов, таких как:  $V_4C$ ;  $Du_2O_3 \cdot TiO_2$ ;  $Du_2O_3 \cdot HfO_2$ ; Hf – в достаточной степени изучен. Карбид бора вступает в химическое взаимодействие со стальными оболочками при температурах выше 600 °С. При температурах, превышающих 1000 °С, взаимодействие значительно ускоряется, а при 1200 °С наблюдается их эвтектическое взаимодействие [2]. Образование интерметаллических фаз сопровождается перераспределением компонентов стали и заметным ухудшением

ее механических свойств. При облучении возрастает скорость взаимодействия  $V_4C$  с оболочками из стали 06X18H10T и сплава ЭП-630У.

Титанат и гафнат диспрозия совместимы с аустенитными нержавеющими сталями до температур 900...1000 °С, гафний совместим с ними до 1200 °С [2, 16].

Исследование совместимости карбида бора с оболочкой из циркониевых сплавов показало, что вплоть до температуры 1500 °С скорость взаимодействия между ними является незначительной.

Новым элементом в разрабатываемых конструкциях ПЭЛ является узел соединения гафниевого стержня с переходным элементом, выполненным из стали 08X18H10T [11, 14, 31]. При разработке данного соединения, исходили из того, что физико-механические свойства соединения и используемых материалов в таких соединениях обусловлены в первую очередь особенностями конструкции и способом изготовления. Выбранные в разработанном соединении соотношения толщины стенки переходной детали, диаметра гафниевого стержня и глубины кольцевых канавок на стержне обеспечили условия, когда разрушение в процессе механических испытаний происходило по гафнию, т.е. по элементу конструкции, большая часть материала которого не претерпела изменений в процессе его изготовления и сохранила исходные физико-механические свойства. Кроме того, согласно расчетам напряженно-деформированного состояния узлов соединения, в процессе работы при наличии теплосмен, циклическая прочность гафниевого стержня в соединении будет находиться за пределами малоциклового усталости и, следовательно, может выдержать без разрушения достаточно большое ( $\sim 10^5$ ) число циклов [31].

Переходная деталь, часть которой в процессе изготовления соединения нагревается до температуры плавления, выполнена конструктивно с запасом, что обеспечивает прочность соединения при растяжении в  $\sim 2$  раза выше по сравнению с прочностью оболочки пэла, заполненной карбидом бора.

Сравнительные механические испытания образцов соединения в исходном состоянии после термоциклирования в капсулах, заполненных соответственно аргоном и водой, а также после нагрева в водяном паре до 1200 °С, показали, что разработанное соединение сохраняет достаточно высокую прочность. Усилия разрушения образцов в исходном состоянии и после термоциклирования в среде аргона и воды имели близкие значения и составляли при комнатной температуре 10,5...11,2 кН, а при температуре 350 °С – 5,5...6,5 кН. Данные значения превышают в  $\sim 2$  раза прочность нержавеющей оболочки пэлов ( $\varnothing 8,2 \times 0,6$  мм). Нагрев образцов в перегретом паре при температуре 1200 °С приводит к незначительному снижению усилий разрушения (на 15...20 %).

В результате механических испытаний образцов установлено, что разрушение происходит на участке

гафниевого стержня в районе первой кольцевой канавки [32] (рис. 6).

Причем, после разрушения на гафниевом стержне и внутренней поверхности переходника сохраняются следы диффузионной прослойки, свидетельствующие о том, что в процессе испытаний вначале разрушается соединение по хрупкой прослойке, а затем уже по гафниевому стержню в месте наименьшего сечения. Полученные результаты измерения микротвердости на нержавеющей стали в зоне оплавления, а также результаты исследования структуры позволяют сделать заключение о достаточной надежности материала переходного элемента в разработанном соединении.



Рис. 6. Внешний вид образца соединения Hf–нержавеющая сталь, прошедшего нагрев в водяном паре при 1200 °С в течение 120 с, после механических испытаний [32]

Результаты испытаний макетов пэлов с циркониевой оболочкой и гафниевым стержнем в нижней части в исходном состоянии и после нагрева в среде водяного пара при 1200 °С в течение 120 с приведены на рис. 7 [33].

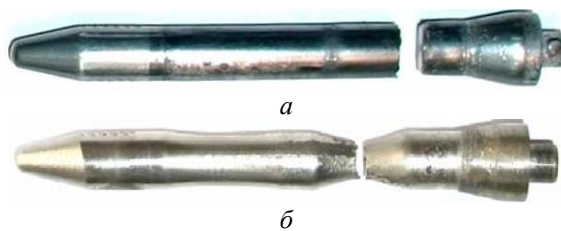


Рис. 7. Вид макетов пэлов после механических испытаний: а – нагрев в среде водяного пара при 1200 °С в течение 120 с; б – исходное состояние [33]

Они свидетельствуют, что разрушение обоих макетов пэлов происходит в районе газосборника. В макетах после испытаний в водяном паре наблюдается хрупкий характер разрушения (см. рис. 7,а). Их осевая деформация не превышает 1 %. Усилия разрушения равняются 7,5...7,8 кН.

В процессе испытаний макетов пэлов в исходном состоянии наблюдалось их удлинение и образование шейки в месте разрушения (см. рис. 7,б), что свидетельствует о пластическом характере разрушения. Значение относительной деформации макетов составляет 8...10 % (относительное удлинение участка оболочки, заполненной  $V_4C$ , составляет  $\sim 28$  %), усилия разрушения равняются 6,2...6,4 кН.

Таким образом, в результате анализа полученных результатов можно заключить, что разработанные соединения гафниевого стержня с оболочками пэлов обладают достаточно высокой надежностью и могут быть рекомендованы для дальнейшего использования при производстве пэлов.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. В ННЦ ХФТИ разработаны технологии изготовления нейтронопоглощающих материалов в виде порошков, стержней и таблеток как для пэлов ПС СУЗ реактора ВВЭР-1000, так и для пэлов поглощающих вставок, используемых в сухих хранилищах ОЯТ.

2. Разработаны конструкции пэлов с применением указанных материалов, изготовлены опытные партии и проведены их вне реакторные испытания в обоснование надежности и безопасности при параметрах и условиях работы в реакторах ВВЭР-1000 и сухих хранилищах ОЯТ.

3. Для завершения комплекса работ для лицензирования новых разработок необходимо провести радиационные испытания пэлов с их использованием.

4. Осуществлены взаимосвязи и показана возможность организации промышленного изготовления пэлов в Украине для обеспечения реакторов ВВЭР-1000.

## БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. И.Н. Васильченко, С.А. Кушманов, В.М. Махин. Задачи исследований пэлов для ВВЭР-1200 // *Сб. трудов IX Российской конференции по реакторному материаловедению, 14-18 сентября 2009 г., Димитровград*. Димитровград: ГНЦ РФ НИИАР, 2009, в. 3, с. 351-356.

2. В.Д. Рисованый, Е.Е. Варлашова, С.Р. Фридман. *Поглощающие материалы и органы регулирования реакторов ВВЭР-1000 и PWR. Состояние, проблемы и пути их решения*: Обзор. Димитровград: ГНЦ РФ НИИАР, 1998, 66 с.

3. В.И. Ряховских, С.В. Шмелёв, В.М. Чернышов и др. Современное состояние разработки и производства органов регулирования ядерных реакторов ВВЭР-1000 // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1997, в. 1(65), 2(66), с. 110-118.

4. Н.Н. Белаш, А.В. Куштым, В.Р. Татарин, И.А. Чернов. Анализ разработок конструкций и материалов пэлов ПС СУЗ повышенной работоспособности // *Ядерные и радиационные технологии*. 2007, т. 7, №3-4, с. 18-28.

5. В.С. Красноруцкий, В.Р. Татарин, Н.Н. Белаш, Н.А. Лаврентьев, Р.В. Матющенко, В.М. Евсеев, И.А. Чернов, А.В. Куштым, Е.Б. Валежный. Разработка и опыт изготовления поглощающих вставок для сухих хранилищ отработавшего ядерного топлива // *Труды XIX Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению, 6-11 сентября 2010 г., Алушта, Украина*. Харьков: ННЦ ХФТИ, 2010, с. 230-231.

6. Патент № EP0364910 (B1) від 25.04.1990, МПК G21C 7/103.

7. В.Д. Рисованый, Е.Е. Варлашова, С.Р. Фридман, В.Б. Пономаренко, А.В. Щеглов. Сравнительные характеристики поглощающих кластерных сборок ВВЭР-100 и PWR // *Атомная энергия*. 1998, т. 84, в. 6.

М.М. Белаш, И.О. Чернов, В.В. Зігунов, В.В. Ворожко. Поглощающий стержневый элемент ядерного ре-

актора, заявка на винахід № а201200848 від 27.01.2012, МПК (2010) G21C 7/10.

9. М.М. Белаш, И.О. Чернов, А.В. Куштым. Поглощающий стержневый элемент ядерного реактора. Патент № 98429 від 10.05.2012 (Бюл. №9 від 10.05.2012), МПК (2012.01) G01C 7/10.

10. М.М. Белаш, В.С. Красноруцкий, М.О. Михайлов. Поглощающий элемент ядерного реактора. Патент № 11315 від 15.12.2005 (Бюл. №12), МПК 7G21C 7/10.

11. М.М. Белаш, В.С. Красноруцкий. Поглощающий стержневый элемент ядерного реактора (Варианты). Патент № 76216 від 17.07.2006 (Бюл. №7), G21C7/08, G21C 21/00.

12. М.М. Белаш, И.О. Чернов. Поглощающий элемент ядерного реактора. Патент №31021 від 25.03.2008, G21C7/08.

13. В.С. Красноруцкий, В.Р. Татарин, П.А. Чернов. Поглощающий стержневой элемент ядерного реактора. Патент №738 от 15.03.2001, (Бюл. №2), G21C7/10.

14. М.М. Белаш. Спосіб виготовлення поглинаючого стержневого елемента ядерного реактора. Патент № 69082 А від 16.08.2004 (Бюл. №8), G21C 21/18; G21C 7/10.

15. М.М. Белаш, М.О. Лаврентьев, В.Р. Татарин. Поглощающий нейтрони элемент. Патент №53916 від 25.10.2010. Бюл. №20, 2010, МПК G21C 7/08, МПК (2009) G21C 7/00 (РН U 201003884 від 06.04.2010).

16. В.Д. Рисованый, В.П. Клочко, В.Б. Пономаренко. *Гафний в ядерной технике*. Димитровград: НИИАР, 1993, 140 с.

17. V.D. Risovany, A.V. Zakharov, E.M. Muraleva, V.M. Kosenkov, R.N. Latupov. Dysprosium hafnate as absorber material for control rods // *Journal of Nuclear Materials*. 2006, v. 355, p. 163-170.

18. Е.Б. Перова, Л.Н. Спиридонов, Л.Н. Комисарова. Фазовые равновесия в системе  $\text{HfO}_2\text{-Dy}_2\text{O}_3$  // *Известия Академии наук СССР. Неорганические материалы*. 1972, т. 8, №10, с. 1878.

19. В.С. Красноруцкий, С.Ю. Саенко, Н.Н. Белаш, А.Е. Сурков, И.А. Чернов, Р.В. Матющенко, Н.Д. Рыбальченко, Ф.В. Белкин. Получение таблеток поглощающих материалов квазиизостатическим прессованием в графитовом порошке // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2009, №2, с. 85-89.

20. В.С. Красноруцкий, С.Ю. Саенко, Н.Н. Белаш, И.А. Чернов, А.Е. Сурков, Н.Д. Рыбальченко, Ф.В. Белкин. Получение таблеток гафната и титаната диспрозия горячим прессованием // *Порошковая металлургия*. 2011, №11/12, с. 43-50.

21. В.С. Красноруцкий, С.Ю. Саенко, Н.Н. Белаш, И.А. Чернов, Ф.В. Белкин, А.Е. Сурков, А.В. Пилипенко, Н.Д. Рыбальченко, Е.Б. Валежный. Влияние способов изготовления и легирования на свойства таблеток гафната диспрозия // *Труды XIX Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению, 6-11 сентября 2010 г., Алушта, Украина*. Харьков: ННЦ ХФТИ, 2010, с. 170-171.



22. С.Ю. Саенко, В.И. Абеленцев, Ж.С. Ажажа, Н.Н. Белаш, С.И. Грибов, Л.Н. Ледовская, Ю.А. Линник, К.В. Лобач, В.В. Колосенко, С.В. Мошта, А.В. Пилипенко, А.Е. Сурков, А.П. Шевстусев. Установка для реализации технологического процесса электроконсолидации // *Труды XVIII Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению, 8-13 сентября 2008 г., Алушта, Украина*. Харьков: ННЦ ХФТИ, 2008, с. 342.
23. Р. Кан, П. Хаузен. *Физическое материаловедение. Фазовые превращения в металлах и сплавах и сплавы с особыми физическими свойствами*. М: «Металлургия», 1987, т. 2, с. 485-493.
24. И.М. Неклюдов, В.М. Ажажа, К.В. Ковтун, А.А. Васильев, Р.В. Ажажа, М.П. Старолат, С.П. Стеценко, К.А. Линдт, А.Ф. Болков, В.И. Попов, Ю.В. Мочалов. Подготовка производства конструкционных материалов из гафния // *Наука и инновации*. 2009, т. 5, №2, с. 23-31.
25. Г.И. Волокита, В.С. Красноруцкий, Э.А. Резниченко, Б.П. Черный, М.П. Зейдлиц, В.С. Вахрушева. Разработка опытной технологии изготовления прутков из гафния для пэлов // *Труды конф. «Проблемы циркония и гафния в атомной энергетике» Алушта, Крым, 14-19 июня 1999*, с. 59.
26. В.П. Шебалдов, А.Н. Иванов, Д.Л. Крисанов и др. Структура и свойства кальцийтермического гафния в зависимости от режимов холодной деформации и термообработки // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение» (42)*. 1991, в. 2, с. 72-77.
27. Н.М. Роевко, Г.И. Волокита, Э.А. Резниченко, В.П. Чернуха. Эволюция текстуры гафниевых прутков в процессе деформации // *ВАНТ. Серия «Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники» (12)*. 2002, №1, с. 136-139.
28. В.С. Красноруцкий, В.А. Зуёк, Н.М. Роевко. Влияние деформации и отжига на структуру и текстуру прутков из кальцийтермического гафния // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение» (86)*. 2005, №3, с. 108-114.
29. В.А. Зуек, В.Н. Гулько, В.В. Корнеева. Влияние термомеханической обработки на текстуру прутков гафния // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение» (94)*. 2009, №4-2, с. 218-225.
30. Г.И. Волокита, Э.А. Резниченко, В.П. Чернуха, В.И. Савченко. Свойства гафниевых прутков, полученных методомковки // *ВАНТ. Серия «Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники» (12)*. 2002, №1, с. 127-132.
31. В.С. Красноруцкий, Н.Н. Белаш, И.А. Петельгузов, Е.А. Слабоспицкая, Л.Ю. Мильяченко, В.И. Савченко, Ж.С. Ажажа. Свойства соединения гафний-нержавеющая сталь, полученного оплавлением электрической дугой в среде аргона // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение» (88)*. 2005, №5, с. 87-93.
32. В.С. Красноруцкий, Н.Н. Белаш, А.М. Абдуллаев, А.И. Жуков, И.А. Петельгузов, Н.А. Михайлов, Е.А. Слабоспицкая. Разработка и некоторые характеристики работоспособности пэлов с поглотителем  $V_4C-Hf$  // *ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение» (90)*. 2007, №2, с. 88-96.
33. В.С. Красноруцкий, Н.А. Михайлов, Н.Н. Белаш, А.М. Абдуллаев, А.И. Жуков. Исследование эффективности и безопасности работы пэлов в циркониевой оболочке с поглотителем  $V_4C-Hf$  // *Ядерные и радиационные технологии*. 2005, т. 5, №3-4, с. 49-59.

Статья поступила в редакцию 24.10.2012 г.

## ПРО ПЕРСПЕКТИВИ РОЗРОБОК ТА ВИРОБНИЦТВА ПОГЛИНАЮЧИХ ЕЛЕМЕНТІВ В УКРАЇНІ

*І.М. Неклюдов, В.С. Красноруцький, В.Р. Татарінов, М.М. Бєлаш*

Представлено результати аналізу розробок варіантів конструкції перспективних пелів, процесів заповнення оболонок порошком карбїду бору, герметизації оболонок пелів, виготовлення та дослідження поглинаючих матеріалів у вигляді таблеток із гафнату диспрозію, стрижнів із металевого гафнію, результати досліджень поведінки розроблених з'єднань і макетів пелів в умовах, що імітують аварійні ситуації. Приведено результати напрацювань з технології та організації виробництва пелів для ПВ ВКЗ ССВЯП. Проаналізовано досягнення і можливості організації в Україні промислового виробництва стрижнів із гафнієвого сплаву ГФЕ-1 для пелів ПС СУЗ реактора ВВЕР-1000.

## ON PROSPECTS OF DEVELOPMENT AND FABRICATION OF ABSORBER ELEMENTS IN UKRAINE

*I.M. Neklyudov, V.S. Krasnorutskyy, V.R. Tatarinov, N.N. Belash*

The paper presents analysis results for developments of prospective absorber rod designs, processes of clad filling with boron carbide, absorber rod cladsealing, fabrication of and research into absorber materials in the form of dysprosium hafnate pellets and metallic hafnium rods. The paper also includes results of investigations into performance of absorber rod compounds and models in conditions similar to accidents, and provides results of technological and engineering developments used to manufacture absorber rods for absorber inserts of ventilated storage containers of spent fuel dry storage facilities. The analysis performed covers accomplishments and possibilities of establishing commercial production of GFE-1 hafnium alloy rods for absorber elements of VVER-1000 control rods.