

Atomerőművi fűtőelem-burkolatok csövei képlékenységeinek vizsgálata mandrel-módszerrel

*Nagy Richárd^{1,2}, Király Márton¹, Horváth Lászlóné¹, Antók Dániel Mihály¹,
Tatár Levente¹, Uri Gábor¹, Cselovszki József¹, Vér Nóra¹, Horváth Áron¹,
Novotny Tamás^{1,2}, Perezné Feró Erzsébet^{1,2}, Hózer Zoltán¹*

¹MTA Energiatudományi Kutatóközpont
1121 Budapest, Konkoly-Thege Miklós út 29-33.

²Óbudai Egyetem, Anyagtudományok és Technológiák Doktori Iskola
1037 Budapest, Doberdó út 6.

A fűtőelemekkel kapcsolatos kutatások legfőbb célja a normál üzemi és az üzemzavari folyamatok mélyebb megértése. Az MTA Energiatudományi Kutatóközpontban a Paksi Atomerőműben használatos E110 és az új gyártástechnológiával előállított E110G jelű fűtőelem-burkolatok képlékenységi tulajdonságait hasonlítottuk össze. Ehhez új mérési elrendezést alkalmaztunk, amelyben több darabból (mandrelből) álló szerszámmal belülről terheltünk a burkolatmintákat, ezzel modellezve az atomerőműben előforduló mechanikai kölcsönhatást az üzemanyag-tabletta és a burkolat fala között. Alapállapotú, magas hőmérsékletű vizgőzben oxidált, hidrogénezett és hőkezelt minták képlékenységét mértük. A mérést végeselemes szimulációval egészítettük ki, melyben összefüggést találtunk a hidrogénezés mértéke és a burkolatanyagok folyási tulajdonságainak megváltozása között.

Bevezetés

Az MVM Paksi Atomerőmű Zrt. által üzemeltetett, VVER-440 típusú atomerőművekben az urán-dioxid kerámia anyagú üzemanyag-tablettákat 1% nióbbiummal ötvözött cirkóniumból készült burkolat-csövekben helyezik el (E110 jelű ötvözet). Az orosz fűtőelem-gyártó kifejlesztett egy új, E110G jelű ötvözetet, amely mind normál üzemi, mind üzemzavari körülmények között kedvezőbb viselkedést mutat [1]. A burkolat feladata kettős: egyfelől átadja a tablettában a hasadások által termelődő hőt a hűtőközegnek, másfelől megakadályozza a radioaktív anyagok kijutását. A Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpontban (MTA EK) az atomerőművi fűtőelem-burkolat kutatások egyik témája a burkolat képlékenységeinek vizsgálata.

Normál üzemi körülmények között a primer körben a hűtővíz 300 °C-on és 12,3 MPa nyomáson folyadék halmazállapotú. Ilyen körülmények között a burkolat kis mértékű tartós folyást szenved (kúszik), az átmérője csökken. A tablettá az üzemelés során kezdetben összetömörödik, összetöredezik, majd a mérete lassan növekszik. A tablettá és a burkolat hőtágulása és üzemi hőmérséklete is eltérő. A hőtágulás okozta méretváltozások, a tablettá duzzadása és a burkolatcső kúszása eredményeképpen a tablettá és a burkolat közötti rés lassan bezárul, a tablettá és a burkolat felületei összeérnek, majd kialakul a tablettá és a burkolat közötti mechanikai kölcsönhatás (PCMI - Pellet-Cladding Mechanical Interaction).

Egy reaktivitás-üzemzavar (RIA - Reactivity Initiated Accident) során a teljesítmény pillanatszerűen megnő, a

többlet hőt a hűtővíz nem képes elszállítani, emiatt a fűtőelem hőmérséklete is megnövekszik. A különböző módon hőtáguló tablettá és a burkolat nagy erővel egymáshoz préselődik. Egy ilyen hirtelen teljesítményugrás esetén a burkolat képlékeny vagy rideg viselkedése határozza meg, hogy megmarad-e a burkolat épsége. Amennyiben a tablettá az olvadáspontja közelébe melegedne, akkor (hőmérsékletfüggő) hőtágulási együtt-hatával számolva [2] 2800 °C körül 4,5%-os lineáris méretváltozást kapnánk. Ezt az értéket egy fűtőelem egy reaktivitás-üzemzavar során még nem érné el, de az konzervatív becslést ad arra, hogy a tablettá nagyságrendileg mekkora méretváltozást szenvedhet el. Rideg burkolatanyag esetén abban repedések indulhatnak el, a burkolat sérülése során a hűtővízbe kikerülhetnek a hasadási termékek és a tablettá egyes részei. A biztonságos üzemelés szempontjából tehát kulcsfontosságú, hogy a burkolat anyaga mekkora terhelést képes elviselni sérülés nélkül.

A burkolat és a hűtővíz kémiai reakciója során cirkónium-dioxid keletkezik a fűtőelem felületén, ami rontja a hőtadást, valamint hidrogén is képződik, amely a burkolat anyagába oldódhat. A burkolatanyag mechanikai jellemzői megváltoznak az oxidáció és a hidrogén felvétele következtében. Nagy mennyiségű oldott hidrogén növelheti a burkolat anyagának szilárdságát, azonban törekenyebbé, ridegebbé is teheti. A magas hőmérsékletre hevülő burkolat fázisátalakulást szenvedhet, kristályszerkezete és textúrája megváltozhat, a gyors lehűtés pedig hőfeszültségeket eredményezhet a fém szerkezetében.

A mandrel-mérés végrehajtása

A jelen kutatás célkitűzése egy olyan egyszerű mérési eljárás megalkotása volt, amellyel a reaktoron kívül is modellezni lehet a tablettá és a burkolat közötti kölcsönhatást. Olyan egyedi mérési elrendezést és szegmentált elemekből álló szerszámot, úgynevezett mandrel-szerszámot terveztünk, amellyel vizsgálható a cirkónium anyagú burkolatcsövekből előállított gyűrűminták képlékenysége radiális terhelés hatására.

A kísérlet tervezési alapját a Karl-Fredrik Nilsson és munkatársai által az JRC-IET Petten-ben alkalmazott geometriában jelöltük ki [3], melyben egy burkolatgyűrű belsejében lévő szegmentált szerszám elemei (mandrelek) közé ékelődő nyomótüske a cső falát sugárirányban kifelé nyomja. Ez a terhelés hasonló a PCMI jelenség során fellépő terheléshez. Numerikus szimuláció segítségével megvalósíthatósági tanulmányt készítettünk és megállapítottuk, hogy a szegmensek száma meghatározza a burkolatanyagból levágott gyűrűminta oldalfalára gyakorolt terhelés homogenitását [4]. A kezdeti tervezés után próbaméréseket végeztünk alapállapotú burkolatokból levágott, 8 mm hosszúságú gyűrűkkel (1. ábra) és a tapasztalatok alapján módosítottuk a mandreleket [5]. A tervezés, a mérés és ennek végeselemes szimulációja az MTA EK Fűtőelemek és Reaktoranyagok Laboratóriumában, a Cirkónium Anyagtudományi Kutatások (CAK) projekt keretében valósult meg.

Kísérleti tervet állítottunk fel annak vizsgálatára, hogy a képlékenység miként változik adott mennyiségű oldott hidrogén hatására, illetve különböző mértékben oxidált minták esetén. A tervet E110 és E110G anyagú mintákkal egyaránt végrehajtottuk.

A méréseket három hőmérsékleten is elvégeztük (20 °C, 150 °C, 300 °C). A magasabb mérési hőmérsékletek állandóan tartása egy egyedi kemence tervezését és építését is szükségessé tette. A mandrelek köré megépített kemence két részből állt: a felső fele a szakítógépi keresztfejéhez rögzített nyomótüskét és a befogó szerszámot, az alsó fele pedig a gyűrűmintát és a befogó szerszámot fűtötte (1. ábra).



1. ábra: A próbaméréshez használt első mandrelek a szakítógépes mérés közben (balra), valamint a magas hőmérsékletű méréshez használt mandrelek a befogó szerszámmal és csőkemencével együtt, a mérés kezdeti állapotában (jobbra).

A mérésorozatban több száz, különböző mértékben kezelt, E110 és E110G anyagú gyűrűminta vizsgálatát végeztük el.

Ezek között alapállapotú, kezeletlen gyűrűminták mellett különböző mértékben, 600 °C-on hidrogénezett (300-3000 ppm), 800 °C-os és 1000 °C-os vízgőzben oxidált (1,5-5% ekvivalens oxidációfok) és inert gázban 700-1000 °C között különböző ideig (300-1800 s) hőkezelt mintákat is vizsgáltunk mindhárom mérési hőmérsékleten. A minták előállítása vákuumozható, kvarccső béléssel csőkemencékben történt. A minták hidrogéntartalmát vagy oxidációfokát tömegméréssel állapítottuk meg. A hőkezelést az oxidációval azonos körülmények között, de vízgőz helyett inert (argon) atmoszférában végeztük a kísérleti tervnek megfelelő időig.

A mandrel-mérést Instron 1195 típusú szakítógéppel hajtottuk végre: a nyomótüskét a mozgó keresztfejre erősítettük, a mandrelek pedig a gép erőmérő cellájához rögzített befogó szerszámban kaptak helyet. A mérés közben regisztráltuk a nyomóerőt és a keresztfej elmozdulását. A tablettá méretváltozását 2 mm/perc sebességű keresztfej-elmozdulással szimuláltuk, a mérést minden esetben a minták elszakadásáig végeztük. Mivel a mérés célja nem a szakítószilárdság vagy a folyáshatár, hanem a képlékeny-rideg viselkedés meghatározása volt PCMI körülmények között, így a mérés során kapott erő-elmozdulás értékek csak közelítésekkel alkalmazhatók a minták által felvett terhelések becslésére. A gyűrűk átlagos átmérőváltozása a keresztfej és azzal együtt a nyomótüske elmozdulásából egyszerűen számítható volt a nyomótüske gúlaszögének ismeretében (11,4°). A minták képlékenységi tulajdonságait a mérés során felvett erő-elmozdulás görbék segítségével határoztuk meg. A képlékeny minták nagy átmérőváltozást viseltek el, a rideg minták ellenben kisebb átmérő-növekedés után hirtelen eltörték, általában nagyobb maximális erő hatására [6].

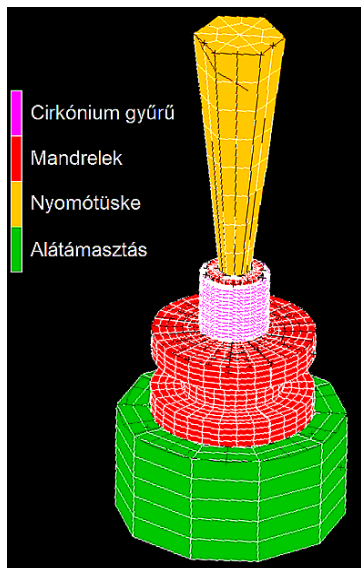
A mérés numerikus szimulációja

Az MTA EK-ban az MSC Marc és Mentat programcsomaggal [7] létrehoztunk egy három dimenziós végeselemes szimulációs modellt, amellyel modellezhető a mandrel-mérés. A modellezett alkatrészek és a minta négyselemből épülnek fel (2. ábra). A cirkóniumgyűrűt a rugalmas alakváltozáson túl képlékeny alakváltozás-moddal jellemeztük, míg az acél alkatrészeket csak rugalmas alakváltozást leíró egyenletekkel számolva közelítettük. Az alapállapotú burkolatminták alakítási keményedését és folyását úgynevezett valós anyagmodell segítségével modelleztük, amely a statikus folyáshatár értékét meghaladó feszültségek esetén alkalmazható. A hidrogénezett minták esetén az alapállapotú anyagmodellben alkalmazott, a feszültség (σ) és az alakváltozás (ϵ) összefüggést megadó folyásgörbét egy paraméterrel (n) végrehajtott numerikus transzformációval módosítottuk, az alábbi módon:

$$(\sigma, \epsilon) \rightarrow \left(n\sigma, \frac{\epsilon^n}{n} \right)$$

A számítások során 2 perc valós mérési időt szimuláltunk, fél másodperces időlépésekkel. A nyomótüske sebességét a méréshez hasonlóan 2 mm/perc értékűnek vettük. Az alátámasztás alsó felületére integrált erőt a nyomótüske elmozdulása függvényében ábrázolva a szakítógépen mért görbékhez hasonló diagramokat kaptunk. A modellszámítás során az összes érintkező felületre azonos

súrlódási feltételeket definiáltunk. A súrlódási együtthatót úgy állítottuk be, hogy a számított erő megfeleljen a mért erőnek [8]. A végesselemes szimulációkban a súrlódási együttható 0,26 érték esetén adta vissza legjobban a mért erő-elmozdulás értéket.



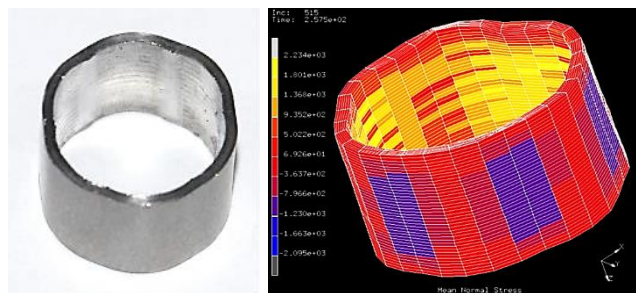
2. ábra: A végesselemes modell hálója.

A mérés és a számítás eredményei

Az előzetes numerikus számítások során a mérési elrendezést vizsgáltuk, azaz a nyomótüske szögének és a mandrelek számának hatását a mechanikai feszültség eloszlására [4]. A szimuláció eredményei alátámasztották, hogy viszonylag homogén feszültségteret kapunk a gyűrűminták mandrellel érintkező részén, hat szegmensből álló szerszám esetén.

Az E110 és az E110G minták hasonlóan viselkedtek, azonban az E110G minták esetén a nagyobb szakítószilárdság [1] miatt a mért erők 15%-kal nagyobb értékeket vettek fel. Az alapállapotú minták képlékeny alakváltozást szenvedtek, elszakításukhoz 4000 N nagyságú erő kellett, miközben átmérőjük jelentősen, 70-80%-kal növekedett. Ez arra utal, hogy a burkolat jelentős képlékeny tartalékkal bír.

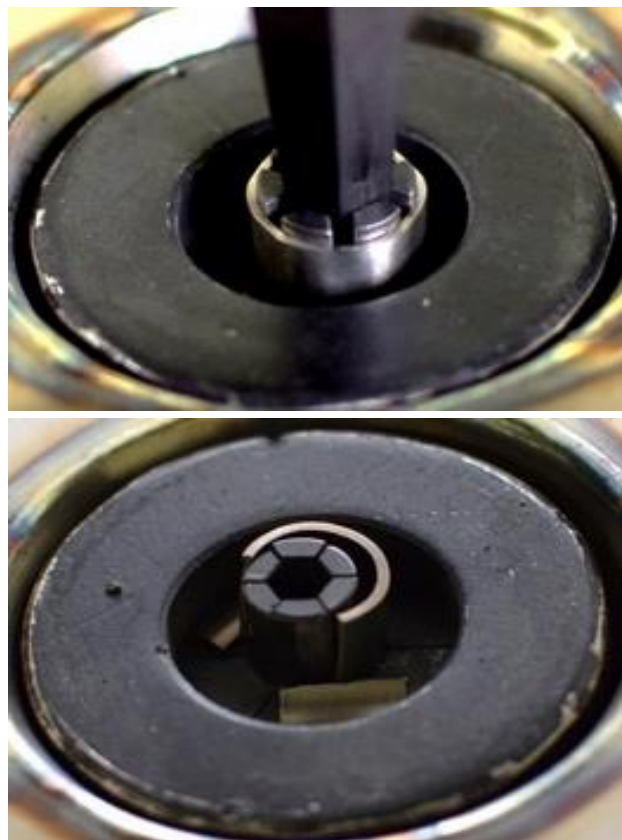
A végesselemes-módszerrel számított erőmaximum hasonló átmérő-növekedés mellett jelentkezett, mint a mért esetben. A 3. ábrán látható, hogy milyen módon torzul egy alapállapotú minta alakja a terhelés hatására, mellette pedig a numerikus számítás eredménye látható. A valós mintaalak és a szimulált minta számított alakja nagyban hasonlít.



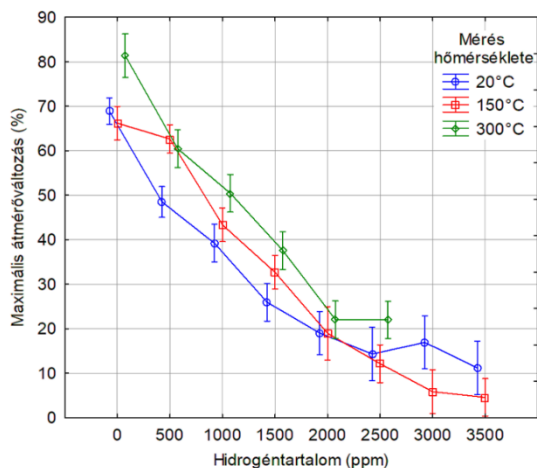
3. ábra: Egy alapállapotú E110G minta 30% alakváltozás után (balra) és a számított alakváltozás (jobbra). A színek a mechanikai feszültség irányára és nagyságára utalnak.

A normál üzemi korróziót meghaladó mértékben oxidált minták mérése során kiderült, hogy az 1000 °C-on végzett oxidáció közel felére csökkenti a gyűrűk képlékenységet a hasonló mértékű, 800 °C-on végzett oxidációhoz képest. A vizsgált ötvözetek fázisátalakulási tartománya 780-900 °C között van, így a magasabb oxidációs hőmérséklet megváltoztatta a minta fáziseloszlását, a kezelés utáni hűtés pedig ezt a szerkezetet rögzítette. Ezt támasztják alá a hőkezelés eredményei is: a 700-850 °C közötti hőmérsékleteken végzett hőkezelés esetén a mért átmérő-növekedés egyértelműen magasabb volt, vagyis ezek a minták képlékenyebbek voltak és nagyobb terhelést viseltek el, mint a 850 °C fölötti hőmérsékleten hőkezelt minták [9,10].

A hidrogénezett minták esetében az oldott hidrogén mennyiségével párhuzamosan növekedett a maximális mért erő, miközben egyre kisebb méretváltozást bírt ki az anyag törés nélkül. Eszerint a minták ridegbbek és keményebbek lettek az oldott hidrogén mennyiségének növelésével [6]. Az alapállapotú és kevés hidrogént (<1000 ppm) tartalmazó minták képlékenyen nyúltak, míg a nagy hidrogéntartalmú (>2000 ppm) gyűrűk kis elmozdulások után rideg töréssel több darabra törtek (4. ábra). A 5. ábrán látható, hogy a maximális elért átmérőváltozás jelentősen csökken a hidrogén mennyiségének növelésével mindhárom mérési hőmérsékleten. A 4,5%-os átmérőváltozáshoz tartozó, fent említett képlékenységi feltételt 1,7 mm nyomótüske elmozdulással el lehetett érni. Ezt a feltételt szinte minden minta teljesítette, még a nagy mennyiségű hidrogént tartalmazó minták egy része is.

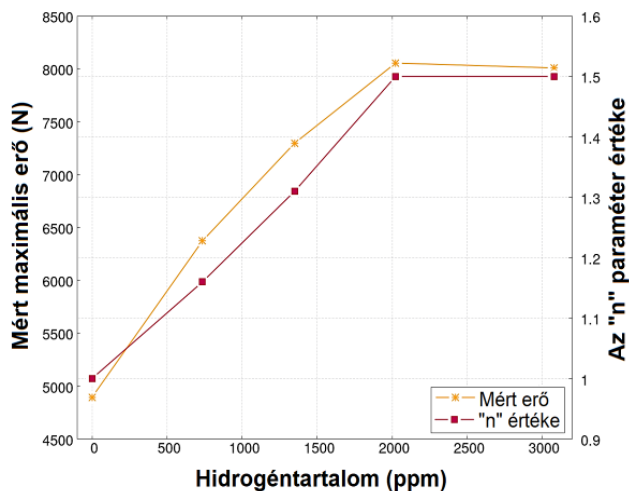


4. ábra: Hidrogénezett minták szobahőmérsékletű mérése képlékenyen (fent, 630 ppm H₂) és ridegen viselkedő minta esetén (lent, 2060 ppm H₂), azonos nyomótüske-elmozdulásnál.

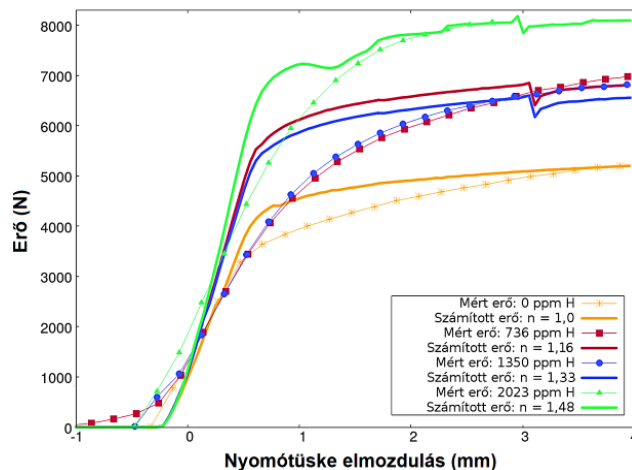


5. ábra: Az E110 minták maximális elért átmérőváltozása a hidrogéntartalom függvényében, különböző mérési hőmérsékleteken.

Végeselemes számításokat végeztünk arra vonatkozóan, hogy visszakapjuk a cirkónium burkolatban különböző mennyiségben oldott hidrogén hatását. A folyásgörbét módosító paraméter értékét a mért maximális erő alapján határoztuk meg [11]. Az adott hidrogénmennyiségek esetén mért maximális erőket és az ezekhez rendelt paraméterértékeket mutatja a 6. ábra. A 7. ábrán láthatók a mért és az adott hidrogéntartalomhoz tartozó paraméterrel számított erő-elmorzulás görbék. A végeselemes számításokkal jó közelítéssel visszakaptuk a nyomótüske-elmorzulásokhoz tartozó mért erőértéket.



6. ábra: A hidrogénmennyiséggel arányos paraméter és a mért maximális erő alakulása a hidrogéntartalom függvényében.



7. ábra: A mért adatokhoz tartozó számított erő-elmorzulás görbék.

Összefoglaló

A mandrel-mérés és annak végeselemes szimulációja során E110 és E110G jelű, orosz gyártmányú atomerőművi fűtőelem burkolatok képlékenységet vizsgáltunk a tablettaburkolat kölcsönhatáshoz hasonló körülmények között.

Az E110 és az E110G minták hasonló viselkedést mutattak. Az alapállapotú minták képlékenyen nyúltak a radiális terhelés hatására és jelentős képlékenységi tartalékkal rendelkeztek. A kis mértékben hidrogénezett minták képlékeny alakváltozást szenvedtek a terhelés hatására, a 2000 ppm feletti hidrogéntartalmú minták azonban ridegké váltak és kisebb alakítás után eltörték. A magas hőmérsékletű vízgőzben, kis mértékben oxidált minták képlékenysége az oxidáció hőmérsékletétől jelentősen függött. A 800 °C-on vízgőzben oxidált minták képlékenyebb viselkedést mutattak - mintegy kétszer akkora méretváltozás után törtek el, - mint az 1000 °C-on oxidált gyűrűk. A hőkezelt minták mérésével kimutatható volt, hogy a 850°C fölötti hőmérsékleten hőkezelt, fázisátalakuláson átment minták szintén kisebb képlékenységet mutattak.

A mandrel-mérést végeselemes módszerrel is szimuláltuk először a mérés tervezési szakaszában, majd a mért adatok kiértékelése után. A végeselemes szimulációs modellben alkalmazott folyásgörbét egy paraméterrel transzformáltuk. A minták mérési adatai alapján megtaláltuk az adott hidrogénmennyiségekhez tartozó paraméter értékeket, amellyel a szimuláció a mandrel-mérésben kapott adatokat jó közelítéssel visszaadta.

Köszönetnyilvánítás

A munkát a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal támogatta az NVKP_16-1-2016-0014 számú Cirkónium Anyagtudományi Kutatások projekt keretében, valamint az MVM Paksi Atomerőmű Zrt. támogatta a 4000172048. EK-G-1175/2015 számú kutatás-fejlesztési szerződés keretében.

Irodalomjegyzék

- [1] Márton Király, Zoltán Hózer, Lászlóné Horváth, Tamás Novotny, Erzsébet Perez-Feró, Nóra Vér: *Impact of thermal and chemical treatment on the mechanical properties of E110 and E110G cladding tubes. Nuclear Engineering and Technology* 51 (2019) 518-525
- [2] *Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors, IAEA-TECDOC-1496, June 2006, pp. 57.*

- [3] Karl-Fredrik Nilsson, Oliver Martin, Cesar Chenel-Ramos, José Mendes: *The segmented expanding cone-mandrel test revisited as material characterization and component test for fuel claddings*, *Nuclear Engineering and Design*, 241 (2011) 445–458
- [4] Király Márton, Nagy Richárd, Hózer Zoltán, *Fűtőelem-burkolatok elridegedésének vizsgálata szegmentált szerszámmal*, *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2015-989-1-1-M0
- [5] Király Márton, Horváth Lászlóné, Nagy Richárd, Novotny Tamás, Perezné Feró Erzsébet, Vér Nóra, Horváth Áron, Hózer Zoltán: *Mandrel szerszámmal végzett előzetes fűtőelem-burkolat vizsgálatok*, *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2016-989-1-1-M0
- [6] Király Márton, Horváth Lászlóné, Uri Gábor, Cselovszki József, Nagy Richárd, Vér Nóra, Horváth Áron, Novotny Tamás, Perezné Feró Erzsébet, Hózer Zoltán: *Mandrel szerszámmal végzett fűtőelem-burkolat képlékenységi vizsgálatok*. *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2017-989-1-1-M0
- [7] MSC.Marc Vol. A: *Theory and User Information*, version 2005. MSC. Software Corporation Ltd. <http://www.mssoftware.com/product/marc>
- [8] Nagy Richárd, Király Márton: *Cirkónium burkolat csövek mandrel tesztjének végeselemes modellezése*. *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2017-236-1-1-M0
- [9] Király Márton, Horváth Lászlóné, Uri Gábor, Cselovszki József, Novotny Tamás, Perezné Feró Erzsébet, Nagy Richárd, Hózer Zoltán: *Mandrel mérések hőkezelt mintákkal*. *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2017-234-1-1-M0
- [10] Király Márton, Horváth Lászlóné, Novotny Tamás, Perezné Feró Erzsébet, Vér Nóra: *Mandrel mérések kémiailag kezelt mintákkal, magas hőmérsékleten*. *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2018-234-1-1-M0
- [11] Nagy Richárd, Antók Dániel Mihály, Király Márton, Tatár Levente, *Hidrogénezett cirkónium burkolatcsövek Mandrel mérésének végeselemes modellezése*, *Kutatási jelentés*, MTA EK-FRL-2018-236-1-1-M0