

СТРУКТУРА ТАБЛЕТОЧНОГО ОКСИДНОГО ТОПЛИВА И ЕГО КОРРОЗИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ НА ОБОЛОЧКУ ТВЭЛА РЕАКТОРА БН-600

Е.А. Кинев

ОАО «Институт реакторных материалов», г. Заречный



Обобщены результаты многолетних исследований структуры и взаимодействия таблеточного диоксида урана и МОКС-топлива с материалами оболочек твэлов реактора БН-600. Обнаружены характерные тенденции перестройки топливных сердечников в условиях массопереноса и ползучести, реализуемых в составе штатных и экспериментальных твэлов. Представлены особенности коррозионных повреждений оболочек в зависимости от их материала, вида топлива, условий эксплуатации и уровня радиационного распухания.

Ключевые слова: твэл, диоксид урана, смешанное уран-плутониевое топливо, оболочка, структура, коррозия.

Key words: Fuel pin, pellet, uranium oxide, mixed uranium-plutonium oxide, cladding, structure, corrosion.

Активная зона (АкЗ) первого типа (01) реактора на быстрых нейтронах БН600 претерпела три последовательных модернизации (01М, 01М1, 01М2), в результате которых совершенствовались конструкционные материалы, оптимизировались теплофизические параметры эксплуатации АкЗ и конструкция твэла, исследовалось поведение смешанного оксидного (МОКС) уран-плутониевого топлива. Практически полный перечень комбинаций конструкционных и топливных материалов АкЗ, за исключением первых твэлов с оболочными сталями в аустенизированном состоянии, представлен в [1].

Опыт трех десятилетий коммерческой эксплуатации реактора позволил изучить особенности структурного поведения таблеточного оксидного топлива и его коррозионное воздействие на оболочку твэлов [2–5]. С позиции принципиальных особенностей взаимодействия «топливо-оболочка» актуален обзор следующих видов облученных твэлов:

- штатный вариант твэлов АкЗ 01 (топливо UO_2 , оболочка из ЭИ-847ауст.);
- штатный вариант твэлов АкЗ 01М1 и 01М2 (топливо UO_2 , оболочка из ЧС-68хд);
- опытный вариант твэлов АкЗ 01М1 (МОКС-топливо, оболочка из ЧС-68хд с добавкой хромового геттера в том числе);
- опытный вариант твэлов АкЗ 01М1 (топливо UO_2 , оболочка из ЭП-450).

Состояние штатных твэлов исследовано в интервале следующих максимальных параметров: выгорание от 2,8 до 11,5% т.а., повреждающая доза от 20,0 до

92,5 сна, линейная нагрузка 32–53 кВт/м. Максимальные параметры твэлов на основе МОКС-топлива: выгорание от 9,2 до 11,8% т.а., повреждающая доза от 58,2 до 78,2 сна, линейная нагрузка 40–46 кВт/м. Максимальные параметры твэлов с оболочками из ЭП-450: выгорание 9,3% т.а., повреждающая доза 76,6 сна, линейная нагрузка 27–32 кВт/м. Температура облучения по длине активной части твэлов изменялась в интервале 390–700°C.

ШТАТНЫЙ ВАРИАНТ ТВЭЛОВ АКЗ 01 (ВЫГОРАНИЕ МЕНЕЕ 7% т.а.)

Типичный вид структуры таблеточного сердечника на основе диоксида урана, облученного в условиях активной зоны первого типа 01, представлен на рис. 1а. Главными особенностями структуры являются

- интенсивное развитие столбчатых зерен (относительный радиус r/r_0 их наружной границы $\sim 0,9$);
- ширина остаточного технологического зазора «топливо-оболочка» более 0,1 мм;
- диаметр центральной полости свыше 2,0 мм.

Интенсивное формирование столбчатой структуры оксидного топлива являлось следствием линейных нагрузок на уровне 50 кВт/м в условиях дополнительного ограничения теплопередачи широким технологическим зазором. Очевидно, что сердечник твэла в таких условиях обладал наименьшей способностью удерживать газообразные продукты деления, провоцировал физико-химическое и термомеханическое воздействие на материал оболочки.

Оболочная сталь ЭИ-847 в аустенизированном состоянии имела низкую радиационную стойкость (критическая доза ~ 40 сна). При сочетании высокого радиационного распухания и воздействия коррозионно-активных продуктов деления внутренняя поверхность твэлов поражалась межкристаллитной коррозией (МКК) на глубину до 200 мкм [2], а значительные механические напряжения со стороны сердечника завершали разгерметизацию оболочек по механизму коррозионного растрескивания (КР) (рис.1б, в).

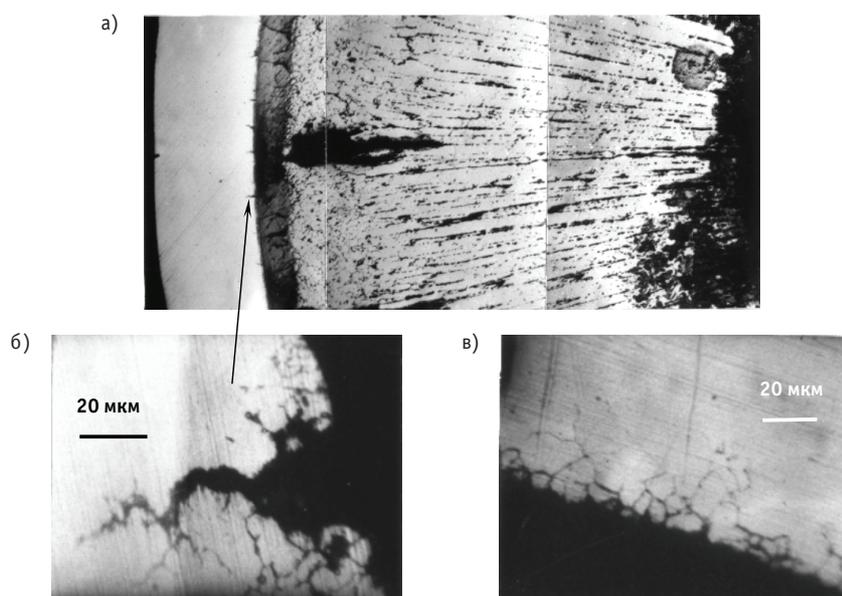


Рис.1. Структура штатного топлива и оболочки твэлов Акз 01(сталь ЭИ-847ауст.): а) – радиальное сечение сердечника в центре Акз; б) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 500$ °С; в) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 550$ °С

ШТАТНЫЙ ВАРИАНТ ТВЭЛОВ АКЗ 01М (ВЫГОРАНИЕ ДО 8 % т.а.)

Первый этап модернизации АкЗ БН-600 был сопряжен с важнейшими инженерно-техническими решениями, ставшими в последующие модернизации основой достижения максимальных выгораний топлива более 11% т.а. Среди этих решений – комплекс мероприятий по уменьшению энергонапряженности сердечника и переход на оболочные стали аустенитного класса в холоднодеформированном (хд) состоянии.

Снижение максимального уровня линейной нагрузки на твэл ниже 47 кВт/м, отказ от перестановок ТВС, увеличение длины активной части топливного сердечника и газосборника, уменьшение ширины исходного технологического зазора явилось причиной ослабления термомеханического взаимодействия «топливо-оболочка» и обретения новых структурных особенностей сердечника.

Радиационная стойкость оболочной стали ЭИ-847хд к распуханию увеличилась (критическая доза ~55 сна); глубина внутритвэльной коррозии оболочек по механизму МКК снижена до значений менее 40 мкм, уменьшена опасность КР [2].

ШТАТНЫЙ ВАРИАНТ ТВЭЛОВ АКЗ 01М1, 01М2 (ВЫГОРАНИЕ ДО 11,5 % т.а.)

В период с 1991 г. по настоящее время штатным материалом твэла БН-600 является аустенитная сталь ЧС-68 в хд-состоянии, гарантирующая работоспособность оболочки при дозах не менее 83 сна.

Радиальный фрагмент структуры таблеточного диоксида урана в оболочке из ЧС-68хд в сечении максимального энерговыделения приведен на рис. 2а. При типичных значениях линейной нагрузки в диапазоне 35–45 кВт/м относительный радиус столбчатой структуры принимает значения 0,6–0,8 соответственно. Периферийная зона сердечника имеет невысокую пористость (от 10 до 25%) и повышенную микротвердость (до 9000 МПа). Величина остаточного зазора близка к исходному значению 0,075 мм и контролируется совокупностью объемных изменений топливного и конструкционного материалов.

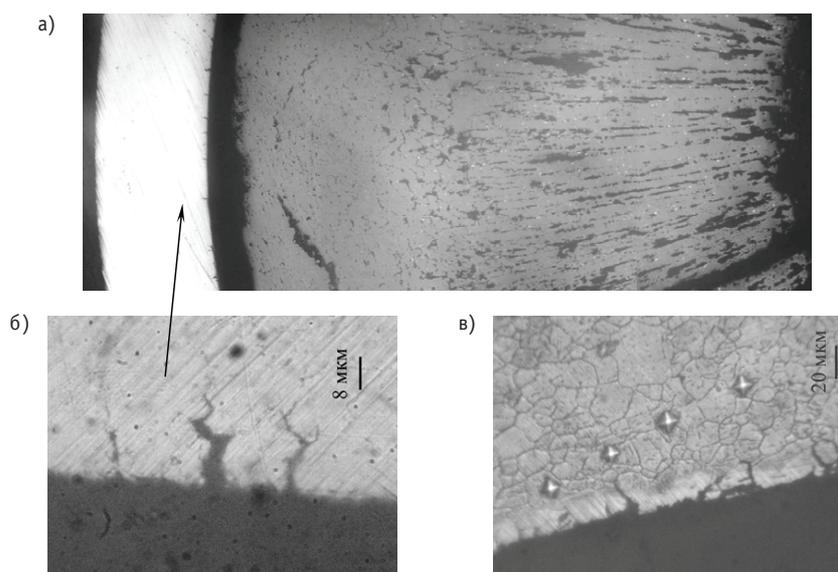


Рис.2 Структура штатного топлива и оболочки твэлов АкЗ 01М2 (сталь ЧС-68х.д.): а) – радиальное сечение сердечника в центре АкЗ; б) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 500$ °С; в) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 600$ °С

Коррозионное воздействие диоксида урана на сталь ЧС-68хд реализуется в форме МКК (при дозах менее 70–75 сна) либо комбинацией МКК и КР при радиационном распухании стали более 10% для доз ~80 сна и выше (рис. 2б, в) [3].

ОПЫТНЫЙ ВАРИАНТ ТВЭЛОВ АКЗ 01М1 (ТОПЛИВО МОКС)

Структура МОКС-топлива имеет многозонное строение, типичное для оксидного топлива быстрых реакторов (рис. 3а). Однако в сравнении со штатным таблеточным топливом из диоксида урана существует ряд индивидуальных особенностей:

- периферийная зона сердечника имеет более высокую пористость (до 40%) и меньшую микротвердость (до 6000 МПа);
- в матрице топлива, изготовленного методом механического смешивания, даже после облучения сохраняются области негомогенности – глобулярные частицы двуоксида урана до 100 мкм в диаметре [4];
- величина остаточного зазора существенно ниже исходного значения и достигает в пределе значений 0,020 мм;
- в узких зазорах отсутствуют скопления уранатов щелочных металлов;
- в сечениях высокого энерговыделения на внутренней поверхности оболочки формируется топливный переконденсат толщиной 30–50 мкм [4];
- локализация хромовой вставки (геттера) в сердечнике после эксплуатации носит выраженный радиальный характер; зоны локализации имеют температуры ниже 1800°С.

Физико-химическое взаимодействие стали ЧС-68хд с таблеточным МОКС-топливом происходит по типам МКК и сплошной коррозии (рис. 3б, в). Максимум коррозии оболочек (глубина до 70 мкм) регистрируется в верхней части АкЗ, не подверженной существенному радиационному распуханию. Фактов локального коррозионного растрескивания внутренней поверхности оболочек не установлено даже при максимальном выгорании 11,8% т.а.

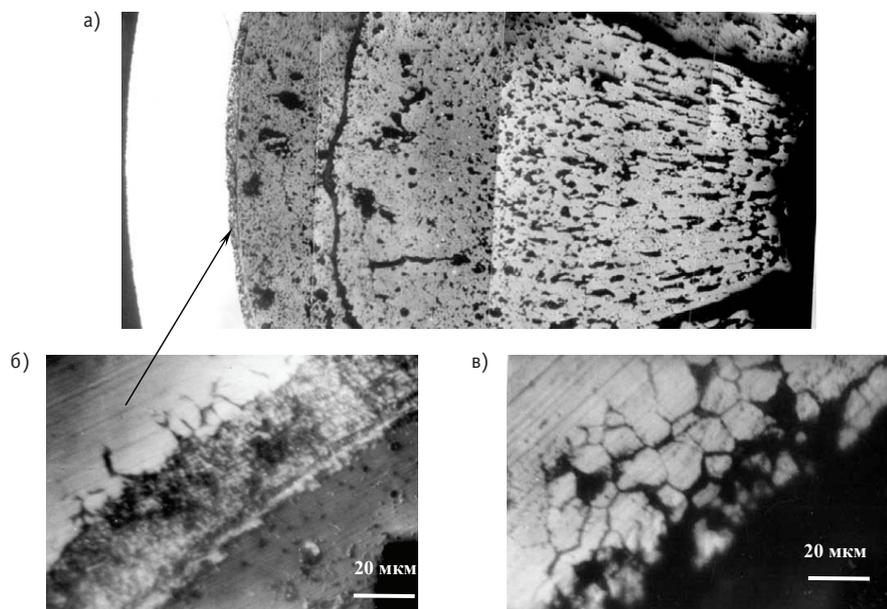


Рис. 3. Структура МОКС-топлива и оболочки твэлов АкЗ 01М (сталь ЧС-68х.д.): а) – радиальное сечение выше центра АкЗ; б) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 600^\circ\text{C}$; в) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 650^\circ\text{C}$

ОПЫТНЫЙ ВАРИАНТ ТВЭЛОВ АКЗ 01М1 (ОБОЛОЧКА ИЗ СТАЛИ ЭП-450)

В твэлах с оболочками из низкораспухающей стали ЭП-450 структурное поведение диоксида урана контролируется процессом термической ползучести. Оболочка ограничивает свободное распухание топлива, и после исчерпания технологического зазора в сердечниках наблюдается интенсивное сужение центральной полости [5]. Периферийная зона таблеток уплотняется, пористость составляет не более 10%, микротвердость достигает 10000–12000 МПа.

Внутритвэльная коррозия оболочек имеет язвенный характер (рис. 4, ба). Развитие коррозии протекает по карбидосодержащей сорбитной составляющей. В низкотемпературной области оболочки 380–450°C глубина язв составляет 40–75 мкм, в середине активной части твэлов коррозия практически отсутствует, а в зоне температур облучения 520–570°C коррозия оболочки может достигать 85 мкм. В осевом и тангенциальном направлениях размер крупных очагов язвенного взаимодействия ферритно-мартенситной стали и диоксида урана составляет сотни микрон; доля дефектного периметра внутренней поверхности оболочки с язвами – 0,05–0,12 [2].

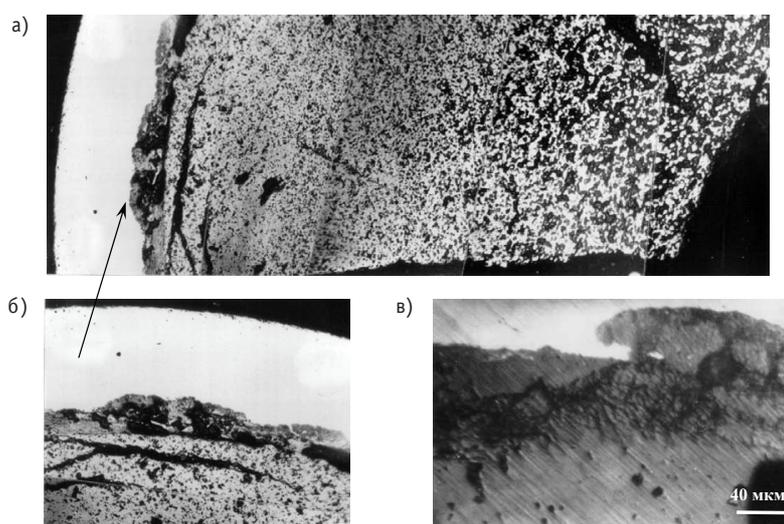


Рис. 4. Структура штатного топлива и оболочки твэлов АКЗ 01М1(сталь ЭП-450): а) – радиальное сечение в верш АкЗ; б) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 550$ °С; в) – оболочка изнутри, $T_{обол} \sim 420$ °С

ХАРАКТЕР СТРУКТУРНЫХ ИЗМЕНЕНИЙ ТАБЛЕТОЧНОГО ТОПЛИВА

Общие закономерности геометрических изменений таблеточных сердечников твэлов по высоте АкЗ 01М1 и 01М2 приведены на рис. 5.

Радиальное формоизменение таблеток прямо пропорционально радиационному распуханию топлива, имеет максимум в центре АкЗ, испытывая в той или иной степени сдерживающее воздействие со стороны распухающей оболочки (рис. 5а). Под оболочкой из ЧС-68хд скорость формоизменения таблеток двуоксида урана составляет 0,3–0,4% на 1% выгорания, скорость формоизменения таблеток МОКС-топлива – 0,6–0,8% на 1% выгорания. Соответствующие значения для UO_2 в контакте с оболочкой из стали ЭП-450 не превышают 0,3%/° т.а., но эта величина условна вследствие значительного механического взаимодействия топлива и металла.

Характер поведения остаточного зазора имеет более сложный вид (рис. 5б). Наиболее близкие к исходному состоянию значения регистрируются для варианта UO_2 – ЧС-68хд. В центре АкЗ стабильность зазора обеспечивается опережающим

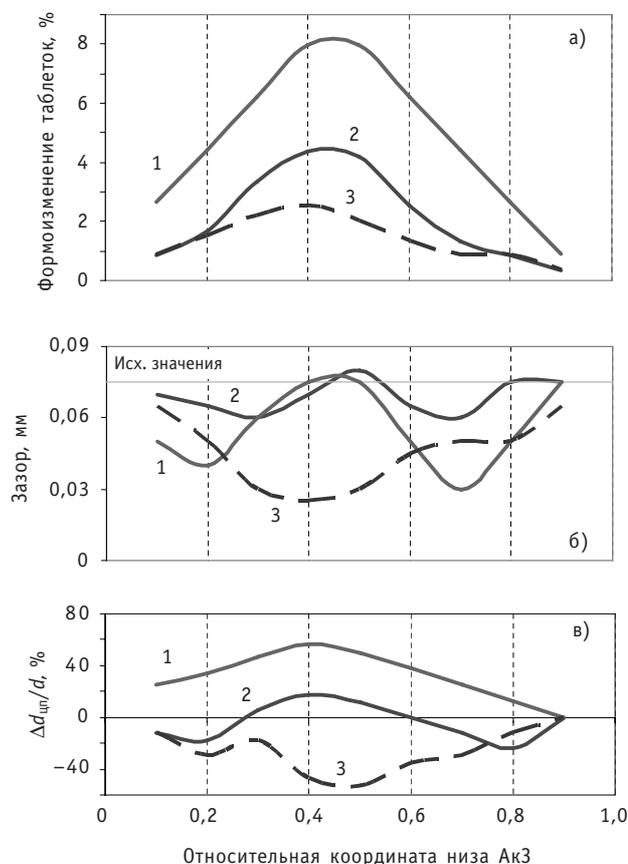


Рис. 5. Характер структурных изменений топливных таблеток: а) – формоизменение наружного диаметра; б) – остаточный зазор; в) – формоизменение диаметра центральной полости; 1 – $UO_2 + ЧС-68хд$; 2 – $МОКС + ЧС-68хд$; 3 – $UO_2 + ЭП-450$

распуханием стали. Локальные сужения зазора ниже и выше центра АкЗ обусловлены преимущественным распуханием топлива либо скоплениями уранатов цезия (см. аналогию на рис. 1а).

В твэлах на основе МОКС-топлива тенденция к локальным сужениям остаточного зазора выражена более контрастно, так как характер распухания материала оболочки одинаковый (сталь ЧС-68хд), а распухание смешанного топлива выше, чем диоксида урана. Дополнительное сужение вызывает пере конденсат топлива на оболочку.

Наиболее низкие значения остаточного зазора присущи твэлам с оболочками из стали ЭП-450. Здесь можно говорить о «заневоливании» сердечника, но радиационной ползучести оболочки при достигнутых параметрах облучения не регистрируется.

Поведение диаметра центральной полости сердечника отражает влияние процессов распухания, массопереноса, ползучести (рис. 5в). Особенностью диоксида урана является наличие зон сужения центральной полости в относительных координатах 0,1–0,2 и 0,8. Это является признаком осевого массопереноса топлива по механизму «испарение-конденсация». Отчасти может иметь место вклад ползучести.

Аналогичных областей сужения центральной полости в МОКС-топливе не обнаружено, что дает основание полагать о доминировании радиального массопереноса.

В случае оболочки из стали ЭП-450 профиль центральной полости диоксида урана формируется в условиях ползучести. Максимум сужения полости может достигать 60% от исходной величины. Немонотонное поведение формоизменения полости на отдельных участках АкЗ обусловлено фактором осевого массопереноса.

Полного зарастания центрального отверстия, оплавления и стекания вниз обоих видов таблеточного топлива в регламентированных режимах эксплуатации реактора БН-600 не установлено.

КОРРОЗИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ ТОПЛИВА НА ОБОЛОЧКУ

Закономерности развития внутренней коррозии оболочек исследованных вариантов твэлов БН600 в зависимости от температуры облучения обобщены на рис. 6а.

Характерной особенностью всех твэлов является низкий уровень коррозии оболочки при температуре менее 400°C независимо от состава стали. С увеличением температуры эксплуатации наблюдается общая тенденция усиления внутритвэльной коррозии, но ее конкретный характер зависит от многих факторов: типа твэла, величины технологического зазора, глубины выгорания, наличия геттера и др.

Оболочка штатных твэлов АкЗ 01 подвергалась максимальному воздействию МКК при температурах 480–530°C, т.е. в средней части АкЗ с интенсивным радиационным распуханием стали ЭИ-847ауст. Непосредственно перед разгерметизацией в этой области появлялись глубокие трещины КР (пунктир на графике), магистральное развитие которых приводило к сквозному разрушению оболочки.

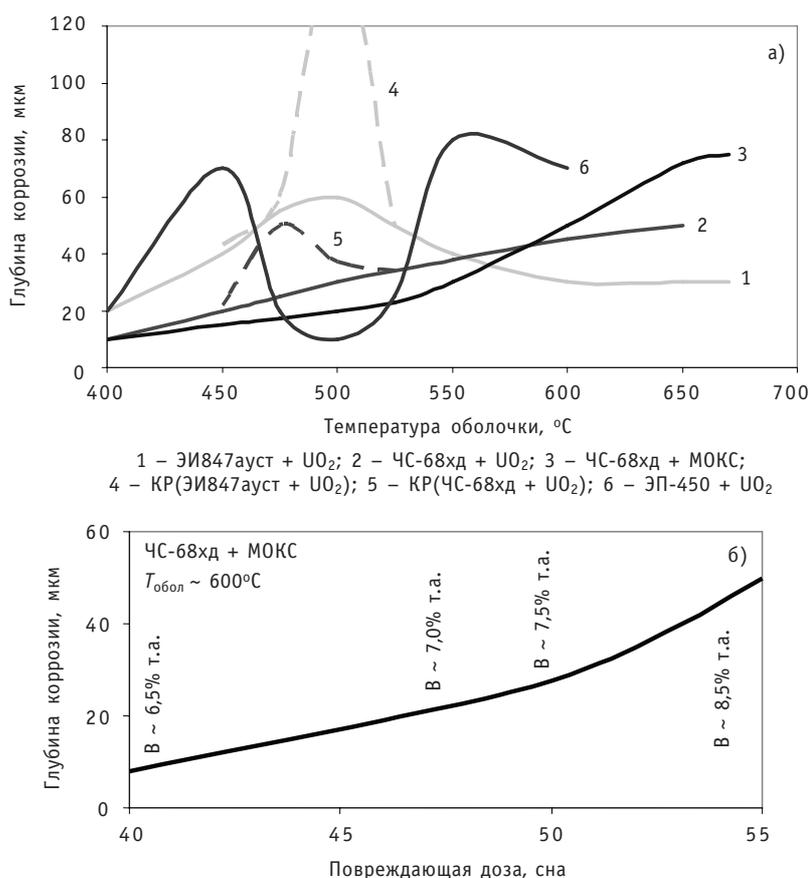


Рис. 6. Зависимости внутритвэльной коррозии оболочек от температуры (а) и дозы (б) облучения

Увеличение температуры оболочки выше 550 °С не сопровождалось ростом глубины коррозии ввиду малого количества коррозионно-активных продуктов деления при максимальном выгорании 6–7% т.а.

Коррозия оболочек из стали ЧС-68хд, взаимодействующих с диоксидом урана, возрастает монотонно с температурой облучения, развиваясь, в основном, по механизму МКК. Лишь при достижении критического уровня распухания (~10%) на внутренней поверхности оболочек возникает ансамбль микротрещин КР. Температурный интервал их существования 450–530°С, максимальная глубина редко превышает 75 мкм, основу ансамбля составляют микротрещины глубиной 20–40 мкм с частотой обнаружения менее 4 мм⁻¹.

Коррозия стали ЧС-68хд в контакте с МОКС-топливом протекает без участия КР. Этому способствует высокая пористость периферии топливных таблеток. Поведение технологического зазора препятствует скоплению в нем продуктов деления и уменьшает в середине АкЗ глубину МКК оболочки до 20 мкм. При максимальных температурах 630–650°С повышенная агрессивность МОКС-топлива увеличивает глубину МКК до 70 мкм.

Температурная зависимость язвенной коррозии стали ЭП-450 характеризуется глубоким провалом при 470–530°С в средней части АкЗ экспериментальных твэлов, где топливный сердечник на основе диоксида урана наиболее плотно прилегает к оболочке и экранирует ее от агрессивных продуктов деления. Ниже 460°С интенсивная коррозия оболочки обусловлена низкотемпературной деградацией физико-механических свойств ферритно-мартенситной стали.

Дозовые зависимости внутритвэльной коррозии конструкционных материалов в общем случае имеют монотонно возрастающий характер. В этом аспекте определяющими являются рост концентрации агрессивных продуктов деления и радиационно-стимулированные фазовые превращения в матрице металла. Пример усиления высокотемпературной коррозии аустенитной стали в твэлах на основе МОКС-топлива дан на рис. 6б.

Спецификой коррозионного воздействия топлива на материалы оболочек твэлов АкЗ последней модернизации О1М2 является доминирование температурного фактора над дозовым. В таких условиях наблюдается благоприятное дистанционирование максимально пораженных внутритвэльной коррозией участков оболочек от зон высокого радиационного распухания.

Литература

1. *Ошканов Н.Н., Баканов М.В., Мальцев В.В. и др.* Основные результаты эксплуатации материалов в первых натриевых контурах установок БН-600 и БОР-60/Сб. докл. III Международной научно-технической конференции «Развитие атомной энергетики на основе замкнутого топливного цикла с реакторами на быстрых нейтронах». – М.: Росэнергоатом, 2009. – 32 с.
2. *Кинев Е.А.* Внутритвэльная коррозия оболочек из нержавеющей стали в условиях реакторного облучения // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. – 2008. № 2. – С. 107-113.
3. *Кинев Е.А., Козлов А.В.* Вклад внутритвэльного коррозионного растрескивания в ухудшение механических свойств оболочек твэлов/Сб. докл. VIII Российской конференции по реакторному материаловедению. – Димитровград: ГНЦ «НИИАР», 2008. – С.387-395.
4. *Кинев Е.А., Цыгвинцев В.А., Козлов А.В., Синельников Л.П.* Результаты комплексных послереакторных исследований отработавшего топлива реактора БН-600/Сб. докл. Конференции НТК-2008. – М: ФГУП «ВНИИНМ», 2008 г.
5. *Кинев Е.А., Цыгвинцев В.А.* Поведение таблеточного топлива при облучении в реакторе БН-600/Сб. докл. IX Российской конференции по реакторному материаловедению. – Димитровград: ГНЦ «НИИАР», 2009 г.

Поступила в редакцию 14.10.2010

УДК 621.039.5

Software Development in Support of the Fast Reactor Operation | E.V. Seleznyov, A.A. Belov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 13 pages, 1 table, 3 illustrations. – References, 17 titles.

Since 1987 up to now at the Beloyarsk NPP the software package named Hephaestus has been used to justify the safety of the fuel loadings. The ways to further develop the operational software have been presented in the Federal target programme named «New generation nuclear energy technologies...».

УДК 621.039.54

Experience and Perspectives of the BN-600 Reactor Core Upgrade | B.A. Vasilev, N.G. Kuzavkov, O.V. Mishin, A.A. Radionychyeva, M.R. Farakshin, Yu.K. Bibilashvili, Yu.A. Ivanov, A.V. Medvedev, N.M. Mitrofanova, A.V. Tselishchev, L.M. Zabudko, V.I. Matveev, Yu.S. Khomyakov, V.A. Chyorny; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 11 pages, 5 tables, 3 illustrations. – References, 10 titles.

The results of three modifications of the BN-600 reactor core are presented. The measures taken to increase the burnup and extend the period between refuellings are reviewed. The prospective measures on further improvement of the operational characteristics of the core are proposed.

УДК 621.039.543.4: 621.039.543.6

Structure of the Pelletized Oxide Fuel and its Corrosive Action on the BN-600 Reactor Fuel Cladding | E.A. Kinev; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 8 pages, 6 illustrations. – References, 5 titles.

The behavior of the structural materials of three modifications of the BN-600 reactor core is presented. The change in the condition of the structural steel with various burnup values is shown. The properties of the cladding steel of various types are compared.

УДК 621.039.53

Main Results of Operation of the Structural Materials in the BN-600 Reactor Cores | M.V. Bakanov, V.V. Maltsev, N.N. Oshkanov, V.V. Chuev; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 10 pages, 4 tables, 6 illustrations. – References, 7 titles.

The main results of research into structural materials of the test and standard fuel sub-assemblies as achieved stage by stage as they are introduced for the increase of the fuel burnup in the BN-600 reactor cores are reviewed.

УДК 621.039.54

Main Results of Inspection of the Serviceability of the Fuel Pins Clad with the New Generation Austenitic Steels | M.V. Bakanov, V.V. Maltsev, N.N. Oshkanov, V.V. Chuev; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 9 pages, 2 tables, 4 illustrations. – References, 7 titles.

The methodology of the post-irradiation inspection of the serviceability of the fuel pins as carried out on the basis of the experience accumulated from the mass primary post-irradiation examination of the condition of the spent BN-600 reactor fuel pins is presented.

УДК 669.14.018.8: 548.4: 621.039.531

Radiation Flaws in Austenitic Steels Induced by Neutron Irradiation and their Effect on the Physical and Mechanical Properties | A.V. Kozlov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 15 pages, 3 tables, 13 illustrations. – References, 16 titles.

Research into the radiation flaws developing in austenitic steels during neutron irradiation in the wide range of temperatures and neutron exposure doses has allowed their evolution during cryogenic, low- and intermediate temperature irradiation to be depicted from the united positions.