

КОРРОЗИОННЫЕ ИСПЫТАНИЯ В ВОДНОЙ СРЕДЕ ТВЭЛОВ, ОБЛУЧЕННЫХ В РЕАКТОРЕ ПЕРВОЙ В МИРЕ АЭС

С.Н. Иванов, С.И.Поролло, Ю.Д. Баранаев, В.Ф. Тимофеев,

Ю.В. Харизоменов

АО «ГНЦ РФ-ФЭИ им. А.И. Лейпунского»

249033 Калужская обл., г. Обнинск, пл. Бондаренко, 1



Хранение отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) в приреакторных бассейнах выдержки (БВ) является одним из ответственных этапов технологии обращения с ОЯТ и требует реализации специальных мер обеспечения ядерной и радиационной безопасности. При длительном хранении в заполненной водой БВ возможна разгерметизация защитных пеналов, в которые обычно помещают ОТВС, и, как следствие, развитие коррозионных процессов в оболочках твэлов.

Исследовались фрагменты отработавших твэлов реактора АМ Первой в мире АЭС при их длительной выдержке в водной среде. Цель работы – получение данных о коррозионном изменении оболочек и топливной композиции твэлов в процессе выдержки, а также о выходе из них радиоактивных продуктов деления. Для проведения исследований была разработана лабораторная установка выдержки твэлов в водной среде и изготовлены опытные фрагменты твэлов. Исследования выполнялись в горячей камере АО «ГНЦ РФ-ФЭИ». Изменение активности водной среды оценивалось по мощности дозы гамма-излучения от отобранной пробы воды. Проводились измерения диаметра и металлографические исследования в различных сечениях фрагментов твэлов.

Коррозионные испытания проводились на фрагментах отработавших твэлов реактора АМ Первой в мире АЭС, длительно хранившихся (более 50-ти лет – твэлы с U-Мо-топливом и ~20 лет – твэлы с UO₂-топливом) по штатной технологии – сначала в пеналах БВ, заполненных водой, а затем в сухих пеналах в воздушной среде. Помещение твэлов в водную среду не привело к сквозному повреждению оболочек твэлов и значительному изменению размеров (диаметра) внешней оболочки. Металлографические исследования фрагментов твэлов после коррозионных испытаний показали наличие на поверхности оболочек межкристаллитной и локальной фронтальной коррозии, глубина которых превышала глубину коррозионных дефектов оболочки до проведения испытаний. Интенсивность выхода радионуклидов из топливной композиции оценивалась по величине мощности дозы гамма-излучения проб воды, взятых из стаканов с фрагментами твэлов. В течение всего периода испытаний мощность дозы излучения от проб воды из стаканов с неповрежденными твэлами оставалась постоянной. Мощность дозы от проб воды, взятых из стаканов с фрагментами твэлов с искусственным дефектом, росла в процессе выдержки.

Ключевые слова: твэл, тепловыделяющие сборки (ТВС), отработавшие тепловыделяющие сборки (ОТВС), коррозия, дефект, водная среда, искусственный дефект, топливная композиция, металлографические исследования, мощность дозы гамма-излучения, микроструктура материала, поверхность оболочек, Билибинская атомная станция (БилАЭС).

ВВЕДЕНИЕ

Тепловыделяющие сборки (ТВС) реактора ЭГП-6 Билибинской АЭС после облучения помещаются в герметичные стальные пеналы, которые затем в течение длительного времени хранятся в водной среде бассейна выдержки.

В соответствии с действующими нормативными требованиями [1 – 10] и анализом безопасности обращения с ТВС должна рассматриваться возможность аварийной разгерметизации стального пенала в бассейне выдержки.

При поступлении воды из бассейна в разгерметизированные сухие пеналы начинается коррозия стальных оболочек трубчатых твэлов. Это может привести к появлению сквозных дефектов в оболочках, вымыванию из твэлов топливной композиции и радиоактивному загрязнению воды бассейна. Количественная оценка скорости этого процесса без соответствующих экспериментальных данных весьма приближительна. Поскольку исследования такого рода на твэлах БилАЭС крайне затруднительны, в качестве аналогов были использованы твэлы реактора Первой в мире АЭС.

Исследования проводились в горячей лаборатории АО «ГНЦ РФ-ФЭИ». Целью исследований являлось получение данных по поведению облученных твэлов в водной среде для прогнозных оценок выхода радиоактивных продуктов из твэлов реактора ЭГП-6 БилАЭС.

КОНСТРУКЦИЯ И УСЛОВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ ТВЭЛОВ

Твэлы реактора Первой АЭС имеют две коаксиально расположенные цилиндрические оболочки из нержавеющей стали 1X18H9T, между которыми располагается топливная композиция, состоящая из топливной крупки, диспергированной в магниевую матрицу. В качестве топлива использовались топливные композиции U-Mo+Mg или диоксид урана (UO_2+Mg). Для компенсации осевых деформаций оболочки и дистанционирования твэлов в графитовых втулках на внешнюю оболочку твэлов с U-Mo+Mg-топливом на расстоянии 26 мм наносились поперечные гофры высотой 0,3 мм. На оболочке твэлов с топливом из диоксида урана поперечные гофры отсутствовали.

Длина активной части твэлов составляла 1700 мм, общая длина – 1885 мм. Внешний диаметр и толщина наружной оболочки твэлов были равны 14,0 и 0,2 мм, а внутренней – 9,0 и 0,4 мм соответственно [11]. На верхнем и нижнем концах твэлов находятся зоны досыпки (стальная крупка в магниевой матрице) и заглушка из стали 1X18H9T.

Тепловыделяющая сборка (ТВС) реактора АМ состояла из соединенных между собой графитовых втулок, в которых располагались центральная опускная трубка диаметром 15 мм и четыре кольцевых твэла, в верхней и нижней частях соединенных с периферийными трубками из стали 08X18H10T. Вода по центральной трубке опускалась к нижней распределительной камере, из которой по четырем периферийным трубкам кольцевых твэлов поднималась вверх, отводя тепло с поверхности внутренних оболочек твэлов [12]. Во время облучения твэлы охлаждались водой под давлением 10 МПа, температура теплоносителя на входе в канал составляла 150 – 190°C, на выходе – 210 – 280°C. Температура наружной оболочки кольцевого твэла, контактирующей с графитовыми втулками канала в среде азота, не превышала 310°C [11].

После облучения ТВС разбиралась, вырезанные твэлы помещались в стальные пеналы, которые размещались в хранилище отработавшего ядерного топлива (ОЯТ).

ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА КОРРОЗИОННЫХ ИСПЫТАНИЙ

Для коррозионных испытаний были отобраны твэлы, которые длительное время находились в сухом хранилище ОЯТ. Характеристики твэлов приведены в табл. 1.

Таблица 1

Время хранения и выгорание исследованных твэлов

Тип топливной композиции твэлов	Период облучения твэлов в реакторе АМ	Время хранения, лет		№ фрагмента	Место вырезки фрагмента	Выгорание топлива в фрагменте, МВт-сут/кг
		общее	в хранилище ОЯТ			
U-Mo+Mg	1954 – 1965 гг.	45 – 55	42	1	0 – 395 мм от низа твэла	10,5 – 13,7
				2	0 – 395 мм от верха твэла	7,7 – 12,1
UO ₂ +Mg	1988 – 1992 гг.	18 – 20	16	3	0 – 395 мм от низа твэла	9,4 – 12,3
				4	0 – 395 мм от верха твэла	7,9 – 12,4

Из верхних и нижних частей двух отобранных твэлов были вырезаны четыре фрагмента длиной 395 мм. Для измерения скорости вымывания топливной композиции при контакте с водной средой в средней части фрагментов твэлов № 2 (U-Mo+Mg) и № 3 (UO₂+Mg) были сделаны поперечные надрезы (искусственные дефекты) размером ~ 6,1×3,2 мм и глубиной 0,6 мм, при этом площадь оголенной топливной композиции составляла ~ 8 мм². Искусственный дефект на фрагменте № 2 был нанесен перед началом коррозионных испытаний, на фрагменте № 3 – после 60-ти суток испытаний. Выгорание топлива определялось расчетным методом во время эксплуатации ТВС в реакторе по энерговыработке каждой ТВС с использованием штатных измерений расхода и температуры водного теплоносителя, а также дополнительно по измерениям гамма-спектрометрическим методом от подготовленных фрагментов твэлов.

Для исключения контакта топливной композиции с воздушной средой горячей камеры в месте отрезки проводилась герметизация фрагментов твэлов с помощью универсального клея и металлических заглушек. Коррозионные испытания фрагментов твэлов проводились на специально изготовленной установке. Во время коррозионных испытаний температура воздуха в горячей камере составляла 19 – 25 °С, при этом в камере поддерживалось разрежение, равное 20 мм водяного столба.

Каждый из четырех фрагментов твэлов помещался в отдельный стакан установки, изготовленный из стали 20. Выбор материала стакана обусловлен тем, что из этой же стали изготовлены пеналы, которые используются для хранения ОТВС в бассейне выдержки БилАЭС. Для уменьшения испарения воды при коррозионных испытаниях на стаканы надевались крышки.

В каждый стакан заливалась дистиллированная вода объемом ~ 300 мл, к которой был добавлен порошок графита массой ~ 0,5 г (для имитации наличия графитовых втулок в ОТВС БилАЭС).

Во время испытаний загерметизированный конец фрагмента всегда располагался в воздухе выше уровня воды в стакане, что исключало загрязнение воды в стаканах радиоактивными продуктами деления через неплотности клеевой герметизации. Второй конец фрагментов твэлов, который находился в воде, имел заводскую герметизацию. Уровень воды в стаканах периодически контролировался с помощью поплавка, макси-

мальный уровень воды ограничивался уровнем сливного отверстия в стенке стакана. После отбора проб в стаканы до уровня сливного отверстия доливалась вода.

При коррозионных испытаниях большая часть образцов, включая заводские концевые детали твэлов, располагалась в водной среде, верхняя часть образцов на участке протяженностью 65 мм – в воздушной среде и участок длиной 15 – 25 мм находился попеременно в воде или воздухе (из-за испарения воды из стаканов в процессе испытаний).

Периодически (через 30 – 60 сут) фрагменты твэлов извлекались из стаканов установки для визуального осмотра и фотографирования. После этого для определения активности воды в стаканах производился отбор пробы объемом 10 мл. Коррозионные испытания фрагментов № 2 (U-Mo+Mg) и № 3 (UO₂+Mg) с искусственными дефектами проводились в течение 430 и 365 сут соответственно, после чего из них были вырезаны образцы для металлографических исследований состояния оболочек и топливной композиции. Испытания фрагментов № 1 и № 4 продолжались в течение 820 и 760 сут соответственно. До и после испытаний, а также в процессе испытаний были проведены измерения диаметра фрагментов твэлов.

ИЗМЕРЕНИЕ АКТИВНОСТИ ВОДЫ

Активность воды в каждом стакане оценивалась по мощности дозы гамма-излучения отобранной пробы воды с помощью дозиметра-радиометра МКС-05 ТЕРРА. Точность измерения мощности дозы γ -излучения дозиметра составляла $\pm 16\%$.

Измерения проводили в лабораторном помещении с фоновым значением гамма-излучения, равным 0,15 мкЗв/ч. Измеряемую пробу воды в пробирке объемом 10 мл размещали вплотную к датчику дозиметра. Для каждой пробы проводилось 20 измерений и вычислялось среднее значение мощности дозы гамма-излучения. Результаты измерений мощности дозы гамма-излучения воды из стаканов с фрагментами твэлов на основе топливных композиций U-Mo+Mg и UO₂+Mg приведены на рис. 1, 2.

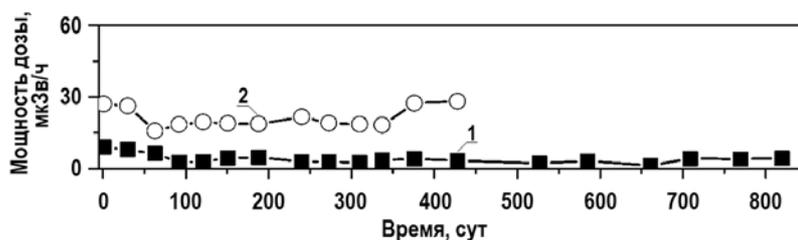


Рис. 1. Изменение мощности дозы гамма-излучения воды в стаканах с фрагментами твэла на основе композиции U-Mo+Mg в зависимости от времени испытаний: 1 – герметичный фрагмент № 1; 2 – фрагмент № 2 со сквозным дефектом

Активность воды в пробах, взятых из стакана с герметичным фрагментом № 1 твэла с U-Mo+Mg-композицией после 90-суточной выдержки, устанавливалась на приблизительно одинаковом уровне $3,3 \pm 1,3$ мкЗв/ч (рис. 1). При периодических осмотрах фрагмента № 1 каких-либо повреждений его наружной оболочки обнаружено не было. Мощность дозы гамма-излучения воды из стакана с негерметичным фрагментом № 2 твэла с U-Mo+Mg-композицией после небольшого падения в начале испытаний постепенно возрастала с 16 до 28 мкЗв/ч из-за выхода в воду радиоактивных продуктов деления из топлива через сквозной дефект в оболочке. Уровень активности воды после 430-ти суток испытания в стакане с дефектным фрагментом № 2 оказался примерно в девять раз выше по сравнению со средним уровнем активности воды в стакане с герметичным фрагментом № 1.

Результаты измерения активности проб воды из стакана с бездефектным фрагментом № 4 твэла с топливом из диоксида урана показали, что в течение большей части испытаний мощность дозы γ -излучения изменялась в пределах от 1,4 до 12 мкЗв/ч (рис. 2). Кратковременное увеличение мощности дозы до 24 мкЗв/ч на 330-е сутки испытания было обусловлено, по всей видимости, загрязнением отобранных проб воды (из-за недоста-

ВЫВОД ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ

точно тщательной промывки трубки после отбора проб воды из стакана с негерметичным фрагментом № 3). Мощность дозы проб воды за все время испытания фрагмента № 4 (за исключением кратковременного подъема на 330 сутки) составляла в среднем ~4,2 мкЗв/ч, что близко к мощности дозы пробы воды из стакана с бездефектным фрагментом № 1 твэла с U-Mo-топливом. Это свидетельствует о том, что для герметичных оболочек твэлов активность воды не зависела от типа топлива.

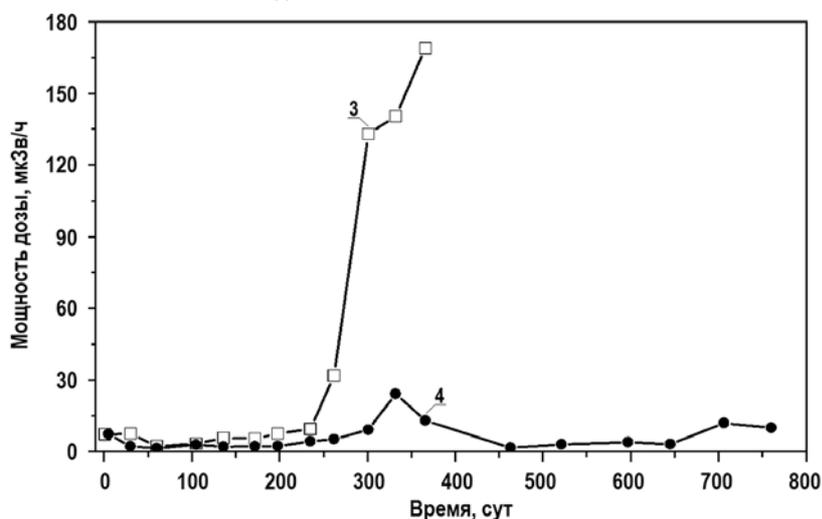


Рис. 2. Изменение мощности дозы гамма-излучения воды в стаканах с фрагментами твэла на основе композиции UO_2+Mg в зависимости от времени испытаний: 3 – фрагмент № 3 со сквозным дефектом; 4 – герметичный фрагмент № 4

После нанесения на фрагмент № 3 твэла с UO_2+Mg -топливом искусственного дефекта (через 60 суток после начала испытаний) наблюдался рост активности воды: вначале медленный (мощность дозы гамма-излучения за первые 175 суток контакта дефекта с водой возросла с 2,2 до 9,6 мкЗв/ч), а затем быстрый (за последующие 130 суток контакта топлива с водой мощность дозы увеличилась до 171 мкЗв/ч). В конце испытаний активность воды в стакане с дефектным фрагментом твэла с UO_2+Mg -топливом повысилась в 78 раз.

ИЗМЕРЕНИЕ ДИАМЕТРА И ОСМОТР ПОВЕРХНОСТИ ФРАГМЕНТОВ ТВЭЛОВ

Измерения диаметра фрагментов твэлов проводились микрометром в четырех сечениях через каждые 100 мм по длине с точностью $\pm 0,01$ мм. В каждом сечении было проведено четыре измерения диаметра твэла с поворотом его относительно продольной оси на 45° .

Измерения показали, что диаметр внешней оболочки фрагментов № 1 и № 4 с композициями топлива U-Mo+Mg и UO_2+Mg соответственно в процессе коррозионных испытаний не изменялся, наблюдаемые изменения диаметра находились в пределах точности измерений. Также не было обнаружено изменения диаметра образцов № 2 (U-Mo+Mg) и № 3 (UO_2+Mg) в месте расположения искусственного дефекта.

Осмотр поверхности фрагментов твэлов выполнялся через бинокль 10-кратного увеличения, фотографирование характерных участков образцов – цифровым фотоаппаратом, оснащенный телеобъективом.

Поверхность оболочек исследованных фрагментов твэлов до коррозионных испытаний была покрыта тонким налетом светло-серого цвета и небольшим количеством мелких пятен темно-серого цвета (рис. 3а, в). В процессе коррозионных испытаний на поверхности фрагментов твэлов образовались разного вида налеты и отложения

(рис. 3б, г). На участках фрагментов, погруженных в водную среду, были обнаружены мелкие пятна налета темно-серого цвета, количество которых по мере увеличения продолжительности коррозионных испытаний увеличивалось, в результате этого поверхность фрагментов приобрела более темную окраску. После 60-ти суток коррозионных испытаний на поверхности фрагментов твэлов, контактировавшей с водой, образовались пятна желто-коричневого и красно-коричневого цвета (цвета ржавчины). На участках образцов, расположенных в нижней части стакана, где находился графитовый порошок, наблюдались отложения темно-серого и черного цвета. По мере увеличения срока испытаний количество пятен цвета ржавчины и отложений черного цвета возрастало.

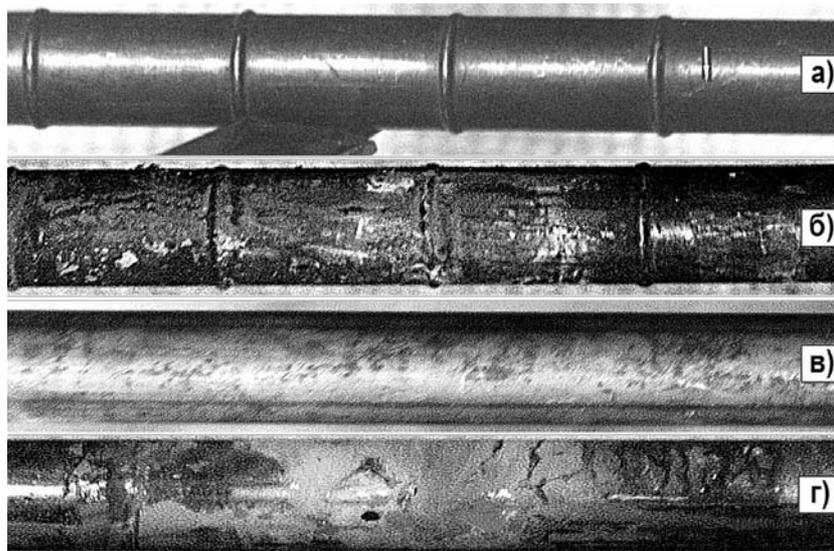


Рис. 3. Вид внешней поверхности фрагментов твэлов: а) фрагмент № 1 (U-Mo+Mg-композиция) до коррозионных испытаний в воде; б) фрагмент № 1 (U-Mo+Mg-композиция) после коррозионных испытаний в воде в течение 820-ти суток; в) фрагмент № 4 (UO₂+Mg-композиция) до коррозионных испытаний; г) фрагмент № 4 (UO₂+Mg-композиция) после коррозионных испытаний в водной среде в течение 760-ти суток

На участках фрагментов твэлов, расположенных вблизи и на границе раздела вода-воздух в стаканах для коррозионных испытаний (в зоне изменения уровня воды), образовалось наибольшее количества отложений различного вида. На поверхности всех фрагментов твэлов на этих участках наблюдались отложения черного, белого и светло-серого цвета, а на поверхности фрагментов № 1 (U-Mo+Mg) и № 4 (UO₂+Mg) обнаружен также налет желтого или желто-коричневого цвета (цвета ржавчины). Вид поверхности фрагментов твэлов, находившейся во время коррозионных испытаний в воздушной среде, практически не изменился.

Отложения на фрагментах твэлов, образовавшиеся в процессе коррозионных испытаний, непрочны связаны с поверхностью – при протирке их матерчатым тампоном, смоченным водным раствором этилового спирта, они частично или полностью удалялись с поверхности фрагментов.

В образце № 2 с U-Mo+Mg-топливом в искусственном дефекте наблюдалось лишь локальное поверхностное окисление топливной композиции (рис. 4а), после 60-ти суток обнаружено вымывание топлива с образованием каверны. После 135-ти суток испытаний на поверхности оболочки вокруг дефекта образовался светло-серый налет, а после 165-ти суток испытаний топливная композиция из искусственного дефекта оказалась вымытой на всю толщину топливного кольца, при этом была видна внутренняя оболочка (рис. 4б). При дальнейших испытаниях до 430-ти суток вид искусственного дефекта на фрагменте № 2 не изменился.

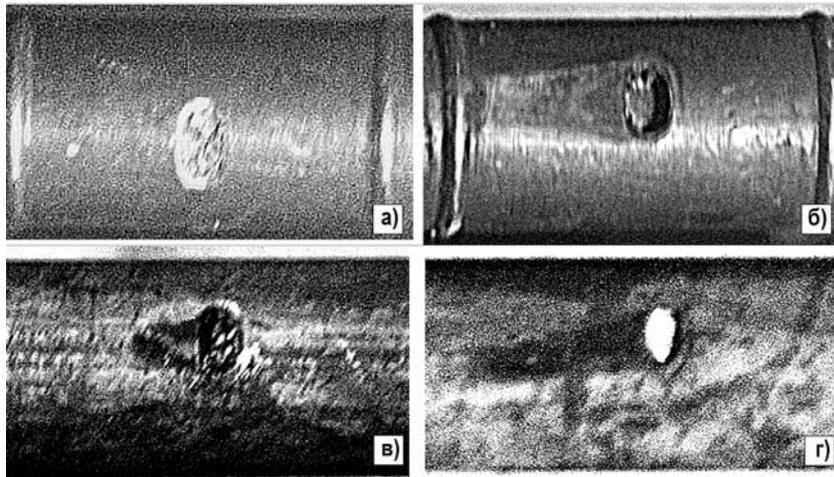


Рис. 4. Вид внешней поверхности фрагментов твэлов с искусственным дефектом после контакта топливной композиции с водной средой: а) фрагмент № 2 с U-Mo+Mg-композицией после 30-ти суток; б) фрагмент № 2 с U-Mo+Mg-композицией после 165-ти суток; в) фрагмент № 3 с UO_2 +Mg-композицией после 75-ти суток; г) фрагмент № 3 с UO_2 +Mg-композицией после 170-ти суток

В зоне контакта топливной композиции (топливо UO_2 +Mg) с водной средой фрагмента твэла № 3 поверхность искусственного дефекта приобрела окраску темно-серого цвета, а на поверхности оболочки вблизи дефекта образовался черный налет. После 75-ти суток контакта топливной композиции с водой в месте дефекта обнаружена каверна (рис. 4в), а после 170-ти суток – вся поверхность дефекта приобрела окраску белого цвета (рис. 4г). При дальнейших коррозионных испытаниях до 305-ти суток вид дефекта на фрагменте № 3 практически не изменился.

МЕТАЛЛОГРАФИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Металлографические исследования проводились в различных сечениях фрагмента № 2 твэла с U-Mo+Mg-топливом и фрагмента № 3 твэла с UO_2 +Mg-топливом после их испытания в водной среде в течение 430-ти и 365-ти суток соответственно. Исследовались поперечные сечения образцов твэлов, расположенные в воде, воздушной среде, в зоне изменения уровня воды в стакане (т.е. находящиеся попеременно в среде воздуха и в месте расположения искусственного дефекта).

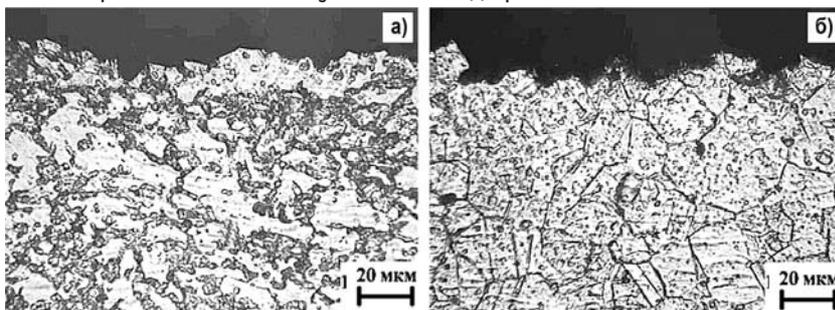


Рис. 5. Микроструктура материала с внешней стороны наружной оболочки твэлов с U-Mo+Mg-топливом (а) и UO_2 +Mg-топливом (б) после облучения, длительного хранения и коррозионных испытаний в водной среде в течение 430-ти и 365-ти суток соответственно

Для определения исходной (до начала испытаний) глубины дефектов в оболочках исследовались сечения твэлов, расположенные вблизи места вырезки фрагментов для проведения коррозионных испытаний. Изготовление шлифов проводилось в горячей камере по стандартной методике, металлографические исследования выпол-

нялись на дистанционном оптическом микроскопе МИМ-15.

При металлографических исследованиях негерметичного фрагмента твэла с U-Mo+Mg-композицией после коррозионных испытаний на внешней стороне наружной оболочки обнаружены питтинги, язвы (глубиной 10 – 20 мкм) (рис. 5а), межкристаллитная коррозия (глубиной до 15 мкм) и участки с локальной фронтальной коррозией (глубиной до 35 мкм), при этом максимальная глубина коррозии наблюдалась на участке образца, расположенном в водной среде. Глубина коррозионных повреждений на внешней стороне наружной оболочки до проведения коррозионных испытаний изменялась от 5 до 20 мкм. Таким образом, коррозионные испытания в течение 430-ти суток в водной среде привели к появлению более глубоких (на 10 – 15 мкм) коррозионных дефектов, по сравнению с дефектами, обнаруженными на оболочке до коррозионных испытаний. Глубина коррозионных язв с внутренней стороны внутренней оболочки достигала 25 мкм, что сопоставимо по величине с коррозионными дефектами на оболочке твэла до проведения коррозионных испытаний. Толщины внешней и внутренней оболочек в процессе коррозионных испытаний не изменилась и составляла 0,20 – 0,23 и 0,38 – 0,42 мм соответственно.

При исследованиях негерметичного фрагмента твэла на основе диоксидного (UO₂+Mg) топлива после коррозионных испытаний на внешней стороне наружной оболочки обнаружены язвы, питтинги и участки с локальной фронтальной коррозией, при этом глубина коррозионных повреждений составляла, в основном, 2 – 17 мкм (рис. 5б) и лишь глубина отдельных язв – от 25 до 35 мкм. Максимальная глубина коррозионных повреждений наблюдалась также на участке образца, расположенном в водной среде. Глубина коррозионных повреждений на внешней стороне наружной оболочки до проведения коррозионных испытаний составляла 7 – 15 мкм. Коррозионные испытания в течение 365-ти суток в водной среде привели к появлению лишь отдельных более глубоких (на 10 – 20 мкм) коррозионных дефектов по сравнению с дефектами, обнаруженными на оболочке до коррозионных испытаний. Глубина коррозионных повреждений с внутренней стороны внутренней оболочки составляла 10 – 15 мкм и не превышала глубину коррозионных дефектов, наблюдаемых на оболочке твэла до коррозионных испытаний. Толщины внешней и внутренней оболочек в процессе коррозионных испытаний не изменились и составляли 0,20 – 0,21 и 0,38 – 0,4 мм соответственно.

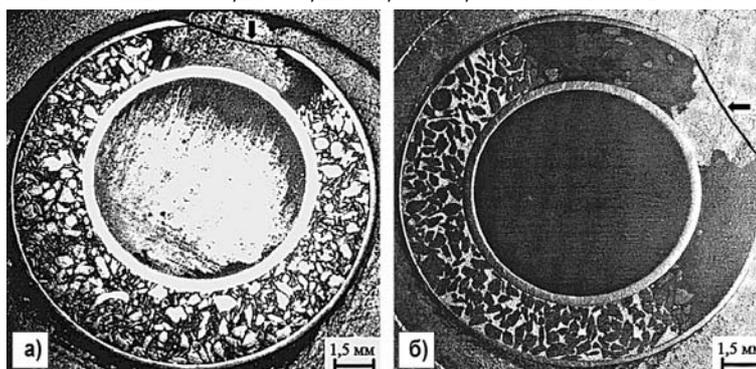


Рис. 6. Общий вид поперечного сечения фрагментов твэлов с U-Mo+Mg-топливом (а) и UO₂+Mg-топливом (б) после испытаний в водной среде в течение 430-ти и 365-ти суток соответственно (стрелками показан контур внешней поверхности искусственного дефекта до проведения коррозионных испытаний)

На рисунке 6 показан общий вид поперечного сечения фрагментов твэлов с топливными композициями на основе U-Mo+Mg и на основе диоксида UO₂+Mg в месте расположения искусственного дефекта. Видно, что в результате выдержки в водной среде как в том, так и в другом случаях произошло вымывание топливной композиции через сквозной дефект.

ВЫВОД ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ

В твэле на основе диоксидного топлива UO_2+Mg участки топливной композиции, прилегающие к краям зоны вымывания, подверглись коррозионному воздействию, в результате которого магниевая матрица окислилась (приобрела темно-серую окраску), а топливная крупка практически отсутствовала в результате ее выкрошивания при резке и приготовления шлифа.

Планиметрические измерения показали, что в сечении фрагмента твэла с топливом на основе $U-Mo+Mg$ -сплава в зоне дефекта произошло вымывание площадью 9 мм^2 (или 11% от общей площади топливного сердечника) топливной композиции с образованием каверны, распространяющейся в радиальном направлении на всю ширину топливного кольца твэла и в окружном – на участке протяженностью 7,7 мм по его периметру.

В сечении фрагмента твэла с композицией на основе диоксида урана (UO_2+Mg) в зоне дефекта произошло вымывание площадью 5 мм^2 (или 6,2%) топливной композиции с образованием каверны, протяженность которой не превышала размера искусственного дефекта. Площадь зоны коррозионного воздействия водной среды (окисления) в поперечном сечении твэла составляла 32 мм^2 (или 39%).

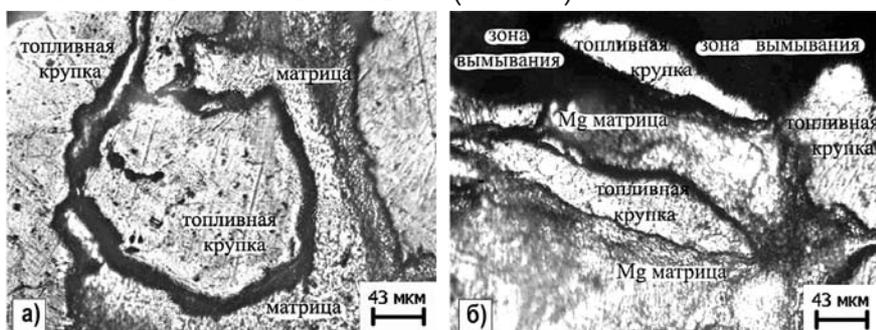


Рис. 7. Микроструктура топливной композиции $U-Mo+Mg$ в сечении искусственного дефекта после испытания образца твэла в водной среде в течение 430-ти суток: вдали от сквозного дефекта (а) и в зоне контакта с водной средой (б)

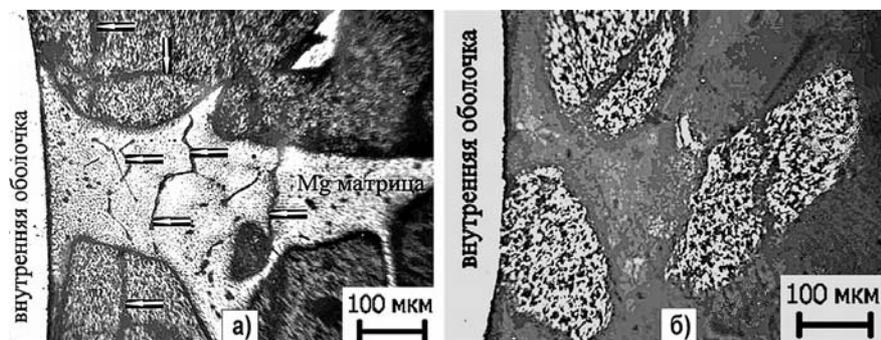


Рис. 8. Микроструктура топливной композиции UO_2+Mg в сечении искусственного дефекта после испытания образца твэла в водной среде в течение 365-ти суток: вдали от сквозного дефекта (а) и в зоне коррозионного взаимодействия с водной средой (б)

Облученная топливная композиция $U-Mo+Mg$ после длительного хранения и коррозионных испытаний фрагментов твэла со сквозным дефектом вне зоны вымывания топлива сохранила целостность, трещин в топливной крупке и магниевой матрице не обнаружено. Как правило, топливные крупки плотно сцеплены с матрицей, а вокруг них наблюдаются темные пояски шириной до 30 мкм (рис. 7а). В зоне контакта топливной композиции с водной средой происходило избирательное растворение магниевой матрицы, при этом топливная крупка не растворялась (рис. 7б). После растворения матрицы вокруг топливных крупок она отделялась от топливной композиции и располагалась в каверне, а затем, попадая в водную среду, опускалась на дно стакана, в котором нахо-

дился образец со сквозным дефектом.

Облученная топливная композиция UO_2+Mg после длительного хранения и коррозионных испытаний фрагментов твэла из сечения, где располагался искусственный дефект, состояла из двух частей (рис. 8).

Первая часть топливной композиции, расположенная вдали от сквозного дефекта, не подвергалась коррозионному воздействию водной среды и сохранила структуру, характерную для облученного топлива данного типа после длительного хранения – в магниевой матрице (светло-серого цвета, рис. 8а), в топливной крупке (темно-серого цвета, рис. 8а) обнаружены многочисленные микротрещины (показаны стрелками), вокруг многих топливных крупок наблюдаются пустоты.

Другая часть топливной композиции, прилегающая к сквозному дефекту, подверглась сильной коррозии (окислению) и состояла из матрицы темно-серого цвета и небольшого количества топливных частиц, не выкрошившихся при изготовлении шлифа (рис. 8 б).

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Состояние твэлов после длительного хранения является предметом многих проведенных исследований [13 – 19]. В данном случае исследованию и испытаниям подвергались твэлы со сроком хранения 50 лет - максимальным сроком хранения твэлов энергетических реакторов.

В результате проведения коррозионных испытаний герметичных фрагментов отработавших твэлов с композициями $U-Mo+Mg$ и UO_2+Mg в водной среде в течение 770 – 820-ти суток повреждения оболочек твэлов не обнаружены. Мощность дозы гамма-излучения проб воды, взятых из стаканов с герметичными фрагментами твэлов, в течение всего периода испытаний оставалась на постоянном уровне. Металлографические исследования фрагментов твэлов после коррозионных испытаний в течение 430-ти суток показали наличие на поверхности оболочек коррозионных дефектов в виде язв, питтингов, межкристаллитной и локальной фронтальной коррозии, глубина которых на 10 – 20 мкм превышала глубину коррозионных дефектов оболочки до проведения испытаний. Таким образом, аварийное попадание воды из бассейна выдержки в сухие пеналы хранения ОТВС реактора ЭГП-6 Билибинской АЭС и ее контакт с герметичными твэлами на основе топливных композиций $U-Mo+Mg$ и UO_2+Mg в течение 820-ти и 770-ти суток соответственно не должно привести к заметному коррозионному повреждению оболочек твэлов, их разгерметизации и, следовательно, повышению активности воды в бассейне выдержки.

При наличии в сухих пеналах хранения ОТВС негерметичных твэлов со сквозным повреждением оболочки аварийное попадание воды из бассейна выдержки в эти пеналы приведет к повышению ее активности, при этом уровень активности воды в них будет зависеть как от типа топливной композиции твэлов, так и времени контакта воды с дефектными твэлами.

Активность воды из стакана с негерметичным фрагментом твэла с топливом на основе диоксида урана после 305-ти суток контакта с водной средой была приблизительно в 10 раз выше, чем активность воды из стакана с негерметичным фрагментом твэла с топливом на основе $U-Mo$ -сплава за тот же период времени. Это связано с разными механизмами поступления радиоактивных продуктов деления из этих топливных композиций в водную среду. В воду, в которой испытывались фрагменты твэла с топливной композицией на основе $U-Mo+Mg$, попадали радиоактивные продукты деления только из объема вымытой топливной композиции, в то время как из топливной композиции на основе диоксида урана в воду поступали также и продукты деления из той части топлива, которая подверглась коррозионному повреждению. Из-за наличия микротрещин и пустот в топливной композиции UO_2+Mg при контакте топлива с водой возможно ее проникновение по трещинам и пустотам внутрь топливной композиции, что приводит к ее окислению и вымыванию из нее продуктов деления.

При взаимодействии воды с топливной композицией UO_2+Mg происходило поступление радиоактивных продуктов деления из самих топливных крупок и из участков матрицы вокруг них, где сосредоточены продукты деления, вылетевшие или протиффундировавшие из топливных крупок в матрицу во время облучения и длительного хранения. Поскольку объем протиффундированной диоксидной топливной композиции был значительным, это привело к большему поступлению продуктов деления из топливной композиции UO_2+Mg и, следовательно, к более сильному повышению активности воды, чем в случае с топливной композицией на основе $U-Mo+Mg$.

Активность воды в стакане с негерметичным фрагментом твэла на основе диоксида урана зависит от продолжительности контакта воды с топливом. В начальный период испытаний наблюдается незначительный рост активности, затем после 175-ти суток контакта воды с топливом ее активность резко возрастает. Поэтому время контакта облученного диоксидного топлива с водой не должно превышать 150-ти суток.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Оболочки отработавших твэлов с топливными композициями $U-Mo+Mg$ и UO_2+Mg после длительного хранения и коррозионных испытаний в водной среде в течение 770 – 820 сут сохранили свою герметичность. Глубина коррозионных дефектов на внешней поверхности наружной оболочки после коррозионных испытаний в течение 430 сут увеличилась на 10–20 мкм, уменьшения толщины оболочек не обнаружено.

Сквозной дефект на оболочке фрагментов твэлов с топливной композицией $U-Mo+Mg$ и топливной композицией UO_2+Mg вызвал увеличение активности водной среды в 8,5 и 40 раз соответственно по сравнению с активностью воды, контактировавшей с бездефектными фрагментами.

В месте расположения сквозного дефекта на твэлах обнаружено вымывание топливной композиции с образованием каверны. В твэле с топливной композицией UO_2+Mg вокруг каверны наблюдалась зона, в которой под действием воды произошла коррозия магниевой матрицы. Образование такой зоны привело к большему выходу радиоактивных продуктов деления в воду, активность которой была в 10 раз выше по сравнению с активностью воды дефектного фрагмента твэла с топливной композицией $U-Mo+Mg$.

Литература

1. НП-016-05. Общие положения обеспечения безопасности объектов ядерного топливного цикла. Электронный ресурс: <https://normativ.kontur.ru/document?moduleId=1&documentId=89086> (дата доступа 10.10.2018).
2. НП-001-15. Общие положения обеспечения безопасности атомных станций. Электронный ресурс: <https://sudact.ru/law/prikaz-rostekhnadzora-ot-17122015-n-522-ob/nr-001-15/> (дата доступа 10.10.2018).
3. НП-082-07. Правила ядерной безопасности реакторных установок атомных станций. Электронный ресурс: http://gostrf.com/norma_data/52/52470/index.htm (дата доступа 10.10.2018).
4. НП-091-14. Обеспечение безопасности при выводе из эксплуатации объектов использования атомной энергии. Общие положения. Электронный ресурс: <https://megaporm.ru/Index2/1/4293769/4293769639.htm> (дата доступа 10.10.2018).
5. НП-061-05. Правила безопасности при хранении и транспортировании ядерного топлива на объектах использования атомной энергии. Электронный ресурс: <https://sudact.ru/law/postanovlenie-rostekhnadzora-ot-30122005-n-23-ob/pravila-bezopasnosti-pri-khranении-i/> (дата доступа 10.10.2018).
6. НП-047-03. Положение о порядке расследования и учета нарушений в работе объектов ядерного топливного цикла. Электронный ресурс: <https://sudact.ru/law/prikaz-rostekhnadzora-ot-23122011-n-736-ob/nr-047-11/> (дата доступа 10.10.2018).
7. НП-004-08. Положение о порядке расследования и учета нарушений в работе атомных

станций. Электронный ресурс: <https://gostinform.ru/normativnye-dokumenty-po-atomnomu-nadzoru/nr-004-08-obj46450.html> (дата доступа 10.10.2018).

8. РБ-013-2000. Требования к содержанию программы вывода из эксплуатации блока атомной станции. Электронный ресурс: <https://gostinform.ru/normativnye-dokumenty-po-atomnomu-nadzoru/rb-013-2000-obj52891.html> (дата доступа 10.10.2018).

9. НП-002-15. Правила безопасности при обращении с радиоактивными отходами атомных станций. Электронный ресурс: <https://www.seogan.ru/nr-002-15-pravila-bezopasnosti-pri-obrashenii-s-radioaktivnimi-otходами-atomnix-stanciiy.html> (дата доступа 10.10.2018).

10. НП-053-04. Руководство по безопасности. Обеспечение безопасности при транспортировании радиоактивных материалов (справочный материал). Электронный ресурс: <https://sudact.ru/law/prikaz-rostekhnadzora-ot-15092016-n-388-ob/nr-053-16/> (дата доступа 10.10.2018).

11. Иванов С.Н., Дворяшин А.М., Попов В.В., Поролло С.И., Шулепин С.В. Послереакторные исследования ТВС и канала СУЗ Первой в мире АЭС. // Атомная энергия. – 2011. – Т. 110. – Вып. 2. – С. 70.

12. Ушаков Г.Н. Первая атомная электростанция (опыт строительства и эксплуатации). – М.-Л.: Госэнергоиздат, 1959. – С. 17-19.

13. Солонин М.И., Синельников Л.П., Цыканов В.А. и др. Материаловедческие проблемы длительного мокрого и сухого хранения ОЯТ РБМК-1000. / Сб. докладов VI Российской конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 11-15 сентября 2000 г. – Димитровград: НИИАР, 2000. – Т. 2, ч. 2. – С. 3-22.

14. Волкова И.Н., Гринь П.И., Кобылянский Г.П. и др. Состояние твэлов РБМК-1000 с оболочкой из сплава Э110 после длительного «мокрого» хранения. / Сб. докладов VII Российской конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 8-12 сентября 2003 г. – Димитровград: НИИАР, 2003. – Т. 2, ч. 1. – С. 258-266.

15. Сидоренко В.А. Концептуальные аспекты развития ядерной энергетики до 2010г. // Атомная энергия. – 1993. – Т. 76. – Вып. 4. – С. 259-263.

16. Иванов С.Н., Конобеев Ю.В., Старков О.В. и др. Материаловедческие исследования твэлов, облученных в реакторе Обнинской АЭС, после 38-летней выдержки в хранилище. // Атомная энергия. – 2000. – Т. 88. – Вып. 3. – С. 183-188.

17. Голосов О., Николкин В.Н., Семериков В.Б. и др. Коррозия отработавшего ядерного топлива реакторов АМБ. / Сб. докладов X Российской конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 27-31 мая 2013 г. – Димитровград: НИИАР, 2013. – С. 253-288.

18. Голосов О., Николкин В.Н., Лютикова М.С. Фракционный состав продуктов коррозии отработавшего ядерного топлива реакторов АМБ. / Сб. докладов X Российской конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 27-31 мая 2013 г. – Димитровград: НИИАР, 2013. – С. 288-300.

19. ИНЕС. Руководство для пользователей международной шкалы ядерных и радиологических событий, издание 2008 г. – Вена: МАГАТЭ, 2010. Электронный ресурс: https://howlingpixel.com/i-en/International_Nuclear_Event_Scale (дата доступа 10.10.2018).

Поступила в редакцию 12.10.2018 г.

Авторы

Иванов Сергей Николаевич, ведущий научный сотрудник, канд. техн. наук
ivanovsn@ippe.ru

Поролло Сергей Иванович, ведущий научный сотрудник, канд. техн. наук
E-mail: porollo@ippe.ru

Баранаев Юрий Дмитриевич, начальник лаборатории
E-mail: baranaev@ippe.ru

Тимофеев Владимир Федорович, ведущий инженер
E-mail: vtimofeev@ippe.ru

Харизоменов Юрий Викторович, ведущий инженер
E-mail: Charizomenov@ippe.ru

CORROSION TESTS IN WATER OF FUEL PINS IRRADIATED IN THE WORLD'S FIRST NPP REACTOR

Ivanov S.N., Porollo S.I., Baranaev Yu.D., Timofeev V.F., Kharizomenov Yu.V.

JSC «SSC RF-IPPE n.a. A.I. Leypunsky»

1 Bondarenko sq., Obninsk, Kaluga reg., 249033 Russia

ABSTRACT

Spent nuclear fuel (SNF) storage in reactor spent fuel pools (SFP) is one of the crucial stages of SNF management technology: it requires special measures to ensure nuclear and radiation safety. During long-term storage in water-filled SFPs, leak-tight canisters in which SFAs are usually placed can be depressurized, which will result in the development of corrosion processes in the fuel element claddings.

We studied fragments of spent fuel rods of the AM reactor of the World's First NPP during their long exposure in the aquatic environment. The aim of the study was to obtain experimental data on the corrosion changes in the claddings and fuel composition of fuel rods during the conditioning process as well as on the release of radioactive fission products from them. For the study, a laboratory facility for exposing fuel rods in the aquatic environment was developed and experimental fragments of fuel rods were made. The study was carried out in the hot chamber of the SSC RF-IPPE. The change in the activity of the aquatic environment was estimated by the dose rate of γ -radiation from the selected water sample. The diameter measurements and metallographic studies were carried out in various sections of fuel element fragments.

Corrosion tests were carried out on fragments of spent fuel rods of the AM reactor of the world's first NPP that were stored for a long time (more than 50 years – fuel rods with U-Mo fuel and ~ 20 years – fuel rods with UO_2 fuel) using standard technology – first in SFP canisters filled with water and then in dry canisters in the air. Placing the fuel rods in the aquatic environment did not lead to through damage to the fuel rod claddings and a significant change in the size (diameter) of the outer cladding. Metallographic studies of fuel rod fragments after the corrosion tests showed the presence of intergranular and local frontal corrosion on the surface of the claddings, the depth of which exceeded the depth of the cladding corrosion defects before testing.

The rate of radionuclide release from the fuel composition was estimated by the γ -dose rate of water samples taken from glasses with fuel element fragments. Throughout the test period, the radiation dose rate of water samples from glasses with intact fuel rods remained constant. The dose rate from water samples taken from glasses with fragments of fuel elements with an artificial defect grew during conditioning.

The results of the study are supposed to be used in the development of spent fuel management technology for the Bilibino NPP which uses fuel analogous to that of the AM reactor fuel.

Key words: fuel pin, fuel assembly (FA), spent fuel, corrosion tests, aquatic environment, artificial defect, fuel material, fission product release, metallography, γ -dose rate, fuel-element claddings, Bilibino NPP.

REFERENCES

1. NP-016-05. General Safety Provisions for Nuclear Fuel Cycle Facilities. Available at: <https://normativ.kontur.ru/document?moduleId=1&documentId=89086> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).

2. NP-001-15. General Safety Provisions for Nuclear Power Plants. Available at: <https://sudact.ru/law/prikaz-rostekhnadzora-ot-17122015-n-522-ob/np-001-15/> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
3. NP-082-07. Nuclear Safety Rules for Reactor Installations of Nuclear Power Plants. Available at: http://gostrf.com/norma_data/52/52470/index.htm (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
4. NP-091-14. Safety Ensuring in Decommissioning of Nuclear Facilities. General Provisions. Available at: <https://meganorm.ru/Index2/1/4293769/4293769639.htm> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
5. NP-061-05. Safety Rules for Storage and Transportation of Nuclear Fuel at Nuclear Facilities (Available at: <https://sudact.ru/law/postanovlenie-rostekhnadzora-ot-30122005-n-23-ob/pravila-bezopasnosti-pri-khraneni-i/> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
6. NP-047-03. Nuclear legislation and regulatory documents. Provisions on the Procedure of Investigation and Recording of Events in Operation of Nuclear Fuel Cycle Facilities. Available at: <https://sudact.ru/law/prikaz-rostekhnadzora-ot-23122011-n-736-ob/np-047-11/> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
7. NP-004-08. Provisions on the Procedure of Investigation and Accounting of Operational Occurrences at Nuclear Power Plants. Available at: <https://gostinform.ru/normativnye-dokumenty-po-atomnomu-nadzoru/np-004-08-obj46450.html> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
8. RB-013-2000. Available at: <https://gostinform.ru/normativnye-dokumenty-po-atomnomu-nadzoru/rb-013-2000-obj52891.html> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
9. NP-002-15. Rules for the Safe Management of Radioactive Waste from Nuclear Power Plants. Available at <https://www.seogan.ru/np-002-15-pravila-bezopasnosti-pri-obrashenii-s-radioaktivnimi-otxodami-atomnix-stanciy.html> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
10. NP-053-04. Safety Regulations for Transport of Radioactive Materials. Available at <https://sudact.ru/law/prikaz-rostekhnadzora-ot-15092016-n-388-ob/np-053-16/> (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).
11. Ivanov S.N., Dvoryshin A.M., Popov V.V., Shulepin S.V. Poost-irradiation Tests of Fuel Assembly and Control Rod Channel of the World First NPP. *Atomnaya Energiya*, 2011, v. 110, no. 2, pp. 17-70 (in Russian).
12. Ushakov G.N. *World Nuclear Power Plant (construction and operation experience)*. Moscow-Leningrad. Gosenergoizdat Publ., 1959, pp. 17-19 (in Russian).
13. Solonin M.I., Ioltukhovskiy A.G., Veluhanov V.P., Kadarmetov I.M., Sinelnikov L.P., Timokhin A.N., Golosov O.A., Kuznetsov V.R., Tsykanov V.A., Pavlov S.V., Markov D.V., Smirnov V.P. Material-related Problems of Long Term Dry and Wet Storage of Spent Nuclear Fuel of RBMK-1000. *Proc. of the VIth Russian Conference on Reactor Materials, Dimitrovgrad, 11-15 Sept., 2000*. Dimitrovgrad. NIIAR Publ., 2000, v. 2, part 2, pp. 3-22 (in Russian).
14. Volkova I.N., Grin P.I., Kobylansky G.P., Lyadov G.D., Maershina G.I., Novoselov A.E., Smirnov V.P. State of RBMK-1000 Fuel Pins with E110 Alloy Claddings after Long Wet Storage. *Proc. of the VIIth Russian Conference on Reactor Materials, Dimitrovgrad, 08-12 Sept., 2003*. Dimitrovgrad. NIIAR Publ., 2003, v. 2, part 1, pp. 258-266 (in Russian).
15. Sidorenko V.A. Conceptual Aspects of Nuclear Power Development to 2010. *Atomnaya Energiya*, 1993, v. 76, no. 4, pp. 259-263 (in Russian).
16. Ivanov S.N., Konobeev Yu.V., Starkov O.V., Porollo S.I., Dvoriashin A.M., Shulepin S.V. Material-related Investigation of Fuel Pins Irradiated in the Reactor of Obninsk NPP after 38 Years Storage. *Atomnaya Energiya*, 2000, v. 88, n. 3, pp. 183-188 (in Russian).
17. Golosov O.A., Nikolkin V.N., Semerikov V.B., Staritsin S.V., Bedin V.V. Corrosion of Spent Nuclear Fuel of AMB Reactors. *Proc. of the Xth Russian Conference on Reactor Materials, Dimitrovgrad, 27-31 May, 2013*. Dimitrovgrad. NIIAR Publ., 2013, pp. 253-288 (in Russian).

18. Golosov O.A., Nikolkin V.N., Lutikova M.S. Fractional Content of Corrosion Products of Spent Nuclear Fuel of AMB Reactors. *Proc. of the Xth Russian Conference on Reactor Materials, Dimitrovgrad, 27-31 May, 2013*. Dimitrovgrad. NIAR Publ., 2013, pp. 288-300 (in Russian).

19. The International Nuclear Event Scale (INES) User's Manual 2010 Edition Jointly Prepared by IAEA and OECD/NEA International Atomic Energy Agency, Vienna, 2010. Available at: https://howlingpixel.com/i-en/International_Nuclear_Event_Scale (accessed Oct 10, 2018) (in Russian).

Authors

Ivanov Sergey Nikolaevich, Leading Resaercher, Cand. Sci. (Engineering)

E-mail: ivanovsn@ippe.ru

Porollo Sergey Ivanovich, Leading Resaercher, Cand. Sci. (Engineering)

E-mail: porollo@ippe.ru

Baranaev Yury Dmitrievich, Head of Laboratory

E-mail: baranaev@ippe.ru

Timofeev Vladimir Fedorovich, Leading Engineer

E-mail: vtimofeev@ippe.ru

Kharizomenov Yury Viktorovich, Leading Engineer

E-mail: Charizomenov@ippe.ru