УДК 621.039.59

P

DOI: 10.26583/npe.2022.3.10

ИССЛЕДОВАНИЕ ТВЭЛОВ, ОБЛУЧЕННЫХ В РЕАКТОРЕ ПЕРВОЙ В МИРЕ АЭС, ПОСЛЕ ДЛИТЕЛЬНОГО ХРАНЕНИЯ

С.Н. Иванов, С.И. Поролло, С.В. Шулепин, Ю.Д. Баранаев, В.Ф. Тимофеев, Ю.В. Харизоменов АО «ГНЦ РФ – ФЭИ» 249033 Калужская обл., г. Обнинск, пл. Бондаренко, 1

> Проведенные исследования облученных в реакторе АМ твэлов с топливной композицией U-Mo+Mg и с топливной композицией UO,+Mg после длительного хранения показали, что на поверхности наружной оболочки всех исследованных твэлов с двумя различными топливными композициями видимых дефектов не обнаружено. После длительного хранения твэлов с U-Мо-топливом наблюдается увеличение диаметра наружной оболочки. Наиболее заметно увеличение диаметра в верхней части твэла. Хранение твэлов с UO2-топливом в течение 15 - 22 лет в пределах точности измерений не приводит к изменению их диаметра. Металлографические исследования показали, что на внешней поверхности наружной оболочки и внутренней поверхности внутренней оболочки твэлов с топливными композициями U-Mo+Mg и UO₂+Mg после длительного хранения наблюдаются дефекты в виде межкристаллитной и неравномерной фронтальной коррозии, язв и питтингов глубиной до 20 мкм. В местах контакта оболочек твэлов с топливной композицией слоев взаимодействия не обнаружено. Заметного уменьшения толщины наружной и внутренней оболочек твэлов в результате длительного хранения не наблюдается, а толщина оболочек в месте расположения дефектов не выходит за пределы ее минимального исходного значения с учетом технологического допуска на разнотолщинность. В результате длительного хранения в обоих типах твэлов обнаружены трещины как в топливных крупках, так и в магниевой матрице. В результате хранения твэлов с U-Мо-топливом в течение 45 – 55-ти лет происходит значительная деградация механических характеристик материала наружной оболочки твэлов, выражающаяся в значительном снижении пластичности оболочки.

Ключевые слова: длительное хранение, тепловыделяющая сборка (TBC), твэл, оболочка, коррозия, топливная композиция, металлографические исследования, механические свойства.

ВВЕДЕНИЕ

Страны, развивающие атомную энергетику, неизбежно сталкиваются с проблемой хранения отработавшего ядерного топлива. Длительность хранения отработавшего

© С.Н. Иванов, С.И. Поролло, С.В. Шулепин, Ю.Д. Баранаев, В.Ф. Тимофеев, Ю.В. Харизоменов, 2022 топлива может быть различной в зависимости от многих факторов, таких, например, как возможность его переработки и транспортировки, состояния топлива и т.д. В настоящее время в России перерабатываются лишь отработавшие твэлы реакторов BB3P-440, БH-600, БH-800, а также твэлы транспортных ЯЭУ и исследовательских реакторов. Твэлы реакторов BB3P-1000 перерабатываются в ограниченном количестве, и большая часть твэлов так же, как и твэлы реакторов РБМК, хранятся в специализированных хранилищах. То же самое относится и к твэлам реактора ЭГП-6 Билибинской АЭС, срок хранения которых приближается к 50-ти годам. Вопросы безопасности АЭС и состояние твэлов после длительного хранения является предметом многих проведенных исследований [1 – 8].

Для обоснования возможности безопасного длительного хранения отработавшего топлива реакторов ЭГП-6 необходимо иметь информацию о реальном состоянии находящихся на хранении отработавших топливных сборок. К сожалению, отсутствие горячих камер на Билибинской АЭС не позволяет провести детальное обследование облученных сборок. Большую часть необходимых данных можно получить в результате исследования твэлов реактора АМ Первой в мире АЭС после облучения и последующего хранения. Твэл реактора ЭГП-6 фактически являются аналогом твэла реактора АМ как по конструкции, так и по примененным при его изготовлении материалам. Срок хранения твэлов реактора АМ после эксплуатации превышает 50 лет, что позволяет сделать достаточно обоснованный прогноз по поведению отработанных твэлов реактора ЭГП-6 при длительном хранении. В случае аварийной разгерметизации пеналов, в которых находятся облученные сборки реактора ЭГП-6, вода из бассейна выдержки (БВ) будет контактировать с твэлами, вызывая их коррозию и последующее загрязнение воды. В работах [9 – 11] приведены результаты коррозионных испытаний в водной среде отработанных твэлов реактора АМ и ВВЭР-440 после длительного хранения, которые необходимы для проведения прогнозных оценок выхода радиоактивных продуктов из негерметичных твэлов реактора ЭГП-6 в водную среду бассейна при разгерметизации пеналов.

Ранее в горячей лаборатории АО «ГНЦ РФ – ФЭИ» было проведено исследование твэлов реактора АМ непосредственно после облучения и после хранения в течение 38-ми лет [12 – 15]. Было показано, что хранение твэлов не привело к каким-либо заметным их повреждениям, а свойства материала оболочек твэлов не претерпели существенных изменений по сравнению со свойствами оболочки сразу после облучения. Для получения более полной статистически достоверной информации было проведено дополнительное исследование 100 твэлов реактора АМ, срок хранения которых составлял 22 – 55 лет. Результаты этого исследования приведены в настоящей статье.

КОНСТРУКЦИЯ И УСЛОВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ ТЕПЛОВЫДЕЛЯЮЩИХ СБОРОК

Твэлы реактора АМ Первой АЭС имеют две коаксиально расположенные цилиндрические оболочки из нержавеющей стали 1X18H9T, между которыми располагается топливная композиция, состоящая из топливной крупки (сплав U-Mo или UO₂), диспергированной в магниевую матрицу. 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, внутренней – 9,0 и 0,4 мм соответственно [13]. Тепловыделяющая сборка (TBC) реактора АМ состояла из графитовых втулок, внутри которых располагались центральная опускная трубка диаметром 15 мм и четыре кольцевых твэла, в верхней и нижней частях соединенных с периферийными трубками из стали 08X18H10T. Теплоноситель (вода) по центральной трубке опускался к нижней распределительной камере, из которой по четырем периферийным трубкам кольцевых твэлов поднимался вверх, отводя тепло от поверхности внутренних оболочек твэлов [16]. Во время облучения твэлы охлаждались водой под давлением 10 МПа, температура воды на входе в ТВС составляла 150 − 190°С, на выходе − 210 − 280°С. Максимальная температура наружной поверхности твэла, которая находилась в контакте с газовой средой состава 0₂ − 0,2%, H₂ − 0,2%, CO₂ − 0,5%, остальное N₂, не превышала 370°С [12, 13].

ХРАНЕНИЕ ТВЭЛОВ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ И ВЫБОР ТВЭЛОВ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЙ

Сразу после извлечения из активной зоны реактора АМ для снижения энерговыделения ОТВС помещалась в приреакторный бассейн выдержки. При хранении ОТВС не контактировали с водой, герметичные ячейки, в которых размещались облученные ОТВС, постоянно вентилировались. После снижения остаточного энерговыделения ОТВС разбирались, твэлы в количестве 50 – 100 штук упаковывались в пеналы, которые транспортировались в специализированное хранилище отработанного ядерного топлива (ХОЯТ), расположенное на территории АО «ГНЦ РФ – ФЭИ». Подземная часть хранилища оборудована принудительной вентиляцией, пеналы с твэлами хранятся на воздухе при температуре, близкой к температуре центрального зала (~ 20°С).

После полной выгрузки топлива из реактора АМ в хранилище находилось около семи тысяч твэлов с металлическим (сплав ОМ-9) и UO₂-топливом. Наибольший интерес для данного исследования представляли твэлы с U-Mo-топливом, которые эксплуатировались в реакторе в 1954 — 1965 гг., т.е. имеющие максимальный срок хранения, а также твэлы с UO₂-топливом, которые эксплуатировались в реакторе начиная с 1987 г. При этом еще одним отборочным фактором была величина выгорания топлива, влияющая на степень повреждения оболочек твэлов. Исходя из этих соображений для дальнейшей работы были выбраны два пенала с твэлами, содержащими U-Mo-топливо, и два пенала с твэлами, содержащими UO₂-топливо, и два пенала с твэлами, содержащими UO₂-топливо, карак-теристики твэлов, находящихся в этих пеналах, при отправке на хранение были в табл. 1.

Таблица 1

№ гнезда ХОЯТ	Вид топлива	Количество твэлов, шт.	Время эксплуатации в реакторе	Диапазон выгорания (среднее), МВт-сут/кг	Длительность хранения в БВ и ХОЯТ, лет
92	U-Mo	108	1954 - 1957	2,4 – 13,1 (7,3)	53-55
233	U-Mo	72	1954 - 1965	0,9 - 20,2 (12,3)	45-55
56	UO ₂	80	1988 - 1992	7,9 - 13 (11,4)	18-20
50	UO ₂	92	1988 - 1995	11,4 - 24,3 (18,6)	15-22

Характеристики твэлов реактора АМ

ВИЗУАЛЬНЫЙ ОСМОТР ТВЭЛОВ

Для проведения исследований в горячую лабораторию АО «ГНЦ РФ – ФЭИ» из хранилища отработавшего топлива были доставлены четыре пенала: два пенала с твэлами на основе U-Mo-топлива, находившихся в гнездах №№ 92 и 233 хранилища, и два пенала с твэлами на основе UO₂-топлива, располагавшихся в гнездах №№ 50 и 56 (см. табл. 1). Из каждого пенала для визуального осмотра, произвольно, было извлечено по 25 твэлов. Всего для осмотра было отобрано 100 твэлов по 50 каждого типа.

Осмотр твэлов производился в горячей камере через бинокль 10-кратного увеличения. Основной целью осмотра являлось оценка состояния поверхности наружной оболочки твэлов и наличия на ней каких-либо дефектов, обусловленных длительным хранением. Каждому осмотренному твэлу присваивался условный номер, фотографировались различные участки поверхности, а также обнаруженные особенности их состояния (цвета побежалости, вид налетов и отложений, риски, царапины и т.д.).



Рис. 1. Типичный вид внешней поверхности отработанных твэлов с топливом U-Mo+Mg реактора AM после длительного сухого хранения в течение 45 – 55 лет: а) – поверхность серого цвета; б) – участок с цветами побежалости; в) – множественные пятна коричневого налета; г) – участок с налетом белого цвета





На рисунках 1, 2 представлены наиболее характерные участки внешней поверхности осмотренных твэлов. Осмотр показал отсутствие видимых повреждений внешней оболочки твэлов и каких-либо дефектов в виде трещин, язв, питтингов и других коррозионных повреждений. Локальных вздутий на наружной оболочке, свидетельствующих о наличии в этом месте сквозного разрушения, также не обнаружено. Поверхность всех твэлов с U-Mo-топливом покрыта тонким налетом светло-серого цвета, на которой видны риски, царапины, следы истирания, задиры и цвета побежалости (рис. 1 а, б). На поверхности многих твэлов наблюдаются пятна налета и отложений серого, коричневого и белого цвета (рис. 1 в, г), а на отдельных твэлах – цвета ржавчины. Большая часть поверхности 45-ти из 50-ти осмотренных твэлов с UO₂-топливом покрыта тонким налетом серого или темно-серого цвета (рис. 2 а, б), у других твэлов поверхность светлая, серебристого цвета (рис. 2 г). На поверхности всех твэлов обнаружены царапины, риски, следы истирания, задиры и цвета побежалости, а также пятна налета и отложений сероги из тонким налетом серого и вета (рис. 2 г). На поверхности всех твэлов обнаружены царапины, риски, следы истирания, задиры и цвета побежалости, а также пятна налета и отложений белого, серого, светло-коричневого и черного цвета (рис. 2 б, в, г).

МЕТОДИКИ МАТЕРИАЛОВЕДЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

После завершения визуального осмотра твэлов для дальнейших материаловедческих исследований были отобраны твэл № 33 с U-Mo-топливом и твэлы № 8 и № 38 с топливом из UO₂, состояние поверхности которых было различным. Твэл № 8 имел светлую поверхностью серебристого цвета, покрытую пятнами светло-серого налета (см. рис. 2 г), а твэл № 38 – поверхность темно-серого цвета (рис. 2 б). Для определения степени деградации свойств материала оболочек и топлива при длительном хранении были использованы результаты послереакторных исследований твэлов непосредственно после облучения, а также после хранения в течение 38-ми лет. Краткая характеристика твэлов, исследованных сразу после облучения и после облучения и хранения в течение 15 – 55-ти лет приведена в табл. 2.

Таблица 2

№ твэла (№ ОТВС)	Период облучения в реакторе	Топливо	Среднее выгорание, МВт·сут/кг	Время хранения, лет
Твэл 33	1954 – 1965	U-Mo+Mg	12,6	45 - 55
Твэл 8	1988 – 1992	UO ₂ +Mg	12,8	18- 20
Твэл 38	1988 – 1995	UO ₂ +Mg	11,4-24,3	15 – 22
4 твэла (АМК-248)	1955 – 1958	U-Mo+Mg	17,6	38
4 твэла (Д-85)	1979 – 1987	U-Mo+Mg	24,9	-
4 твэла (Ж-72)	1986 – 1987	UO ₂ +Mg	5,4	-
1 твэл (Ж-52)	1984 – 1987	UO ₂ +Mg	14,9	-

Характеристики исследованных твэлов

Материаловедческие исследования включали в себя измерение диаметра твэлов, металлографическое исследование топлива и оболочек твэлов, а также измерение кратковременных механических свойств оболочки. Измерения наружного диаметра твэлов №№ 8, 33 и 38 проводились микрометром (с точностью ± 0,01 мм) через каждые 100 – 110 мм по длине твэлов на участках, расположенных между гофрами. На каждом участке было проведено по четыре измерения с поворотом твэла относительно продольной оси на 45°.

Приготовление шлифов для металлографических исследований топлива проводилось в горячей камере по стандартной методике, а микроструктурные исследования выполнялись на дистанционном оптическом микроскопе МИМ-15. Исследование микроструктуры оболочек твэлов проводилось после химического вытравливания топливной композиции на оптическом микроскопе ММР-4.

Механические испытания кольцевых образцов (шириной 2 – 3 мм) оболочек твэлов после вытравливания топлива проводились на дистанционных разрывных машинах МД-2Т и 1689Р-1 со скоростью перемещения активного захвата 1 мм/мин при температуре 25°С. Образцы вырезались из нижней и средней частей твэлов (по четыре – пять образцов с каждого участка). В результате испытаний были получены следующие механические характеристики материала оболочек твэла: предел прочности $\sigma_{\rm в}$, предел текучести σ_{02} и общее относительное удлинение δ_{0} .

ИЗМЕРЕНИЕ ДИАМЕТРА ТВЭЛОВ

Результаты измерения диаметра твэла № 33 с U-Mo-топливом показаны на рис. 3. Там же для сравнения показаны результаты измерения диаметра двух твэлов ТВС Д-85 сразу же после облучения. Видно, что диаметр твэла № 33 больше, чем диаметры двух других твэлов. Особенно заметно это различие для верхних частей твэлов.

У твэлов № 8 и № 38 с топливом из UO₂ какой-либо закономерности в изменении диаметра по длине твэла не наблюдается. Не установлена закономерность изменения диаметра по длине твэлов ТВС №№ Ж-72 и Ж-52, исследованных сразу же после облучения. Большинство значений диаметра твэлов с UO₂-топливом не выходят за пределы технологического допуска на изготовление.





В таблице 3 приведены результаты измерения диаметра облученных в реакторе АМ твэлов с U-Mo- и UO₂-топливом до и после хранения. Видно, что диаметр твэлов с U-Mo-топливом в процессе хранения несколько увеличивается, но для твэлов с UO₂-топливом такой вывод сделать нельзя из-за недостаточной статистики. Таблица 3

· ••••••••••••••••••••••••••••••••••••						
№ твэла (№ ОТВС)	Топливо	Средний диаметр твэлов, мм	Диапазон изменения диаметра твэлов, мм	Максимальное относительное изменение диаметра твэлов*, %		
Твэл 33		14,15	14,06 - 14,22	1,57		
Твэлы 1, 2, 3 (AMK-248)	LI Mo+Ma	14,10	13,98 - 14,17	1 - 1,25		
Твэл 1 (Д-85)	U-IVIO+IVIG	14,11	14,10 - 14,17	1,25		
Твэл 2 (Д-85)		14,08	14,04 - 14,14	0,93		
Твэл 8		14,02	13,98 - 14,08	0,57		
Твэл 38		13,96	13,94 - 13,98	- 0,14		
Твэл 1 (Ж-72)	UU ₂ +Ivig	14,00	13,97 - 14,03	0,21		
Твэл 1 (Ж-52)		13,98	13,97 - 13,99	- 0,07		
 * Максимальное изменение диаметра твэлов определялось относительно его номинального значения, равного 14.00 мм 						

Результаты измерения диаметров твэлов с U-Mo- и UO2-топливом

МЕТАЛЛОГРАФИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ТВЭЛОВ С U-MO-ТОПЛИВОМ

При металлографических исследованиях твэла ТВС Д-85, проведенных сразу после облучения, каких-либо дефектов на его внешней и внутренней оболочках не обнаружено. При исследовании ТВС АМК-248 после 38-ми лет хранения внешняя поверхность на-

ружной оболочки и внутренняя поверхность внутренней оболочки твэлов имеют лишь небольшие дефекты глубиной до 10 мкм в виде мелких язв и межкристаллитной коррозии с выкрашиванием отдельных зерен. Глубина взаимодействия топлива с оболочкой не превышает 1 мкм.

Образцы для металлографических исследований твэла № 33 вырезались в горячей камере алмазным диском на дистанционном фрезерном станке. После химического вытравливания топлива из образца, вырезанного из средней части твэла, было обнаружено, что получившийся кольцевой образец наружной оболочки имеет разрушения, которые произошли в процессе резки (рис. 4 а). Разрушение оболочки с обеих сторон имело аналогичный характер, и произошло в результате хрупкого транскристаллитного скола, идущего под углом 20° от внутренней поверхности оболочки (рис. 4 б). Кроме этого, вблизи скола наблюдается транскристаллитная трещина (на рис. 4 б показана стрелкой).



Рис. 4. Вид образца наружной оболочки твэла № 33 после вытравливания топлива (стрелками показаны места разрушения) (а) и микроструктура материала наружной оболочки в зоне разрушения (б)



Рис. 5. Язва клиновидной формы на внешней стороне наружной оболочки (а) и межкристаллитная коррозия с выкрашиванием зерен на внутренней стороне внутренней оболочки (б) облученного твэла № 33 с U-Mo-топливом (в сечении 400 мм от низа твэла) после хранения в течение 45 – 55-ти лет

С внешней стороны наружной оболочки (со стороны контакта оболочки с газовой средой реактора при облучении) твэла № 33 наблюдается межкристаллитная коррозия глубиной до 9 мкм, питтинги глубиной 4 – 5 мкм и язвы округлой или клинообразной формы глубиной 10 – 20 мкм (рис. 5 а). С внутренней стороны оболочки (со стороны контакта с топливом) наблюдаются лишь питтинги глубиной 1 – 3 мкм (рис. 5 а).

С наружной стороны внутренней оболочки (со стороны топлива) обнаружены локальные углубления протяженностью 80 – 150 мкм по периметру оболочки и глубиной до 18 мкм, образование которых связано, вероятней всего, с технологией изготовления твэла, а не вызваны облучением или длительным хранением. С внутренней стороны внутренней оболочки (со стороны водного теплоносителя при облучении) практически по всему периметру обнаружены коррозионные повреждения в виде межкристаллитной (рис. 5 б) и неравномерной фронтальной коррозии глубиной до 15 и 20 мкм соответственно.

В твэле № 33 топливная композиция, состоящая из частиц сплава U-Mo в магниевой матрице, сохранила свою целостность. Топливные крупки плотно сцеплены с матрицей, а вокруг топливных крупок в матрице наблюдаются пояски темно-серого цвета шириной 25 - 35 мкм (рис. 6). Между магниевой матрицей и оболочками сохраняется плотное сцепление, но при этом в магниевой матрице вблизи оболочек обнаружены единичные микротрещины (рис. 6 б).



Рис. 6. Микроструктура U-Mo-топлива (а) и зона контакта топливной композиции с оболочкой (б) твэла № 33

МЕТАЛЛОГРАФИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ТВЭЛОВ С UO,-ТОПЛИВОМ

В нижнем сечении твэлов ТВС Ж-72 и Ж-52, исследованных сразу после облучения, с наружной стороны внешней оболочки обнаружены лишь небольшие питтинги глубиной до 3 мкм, с внутренней стороны оболочки дефекты отсутствуют.



Рис. 7. Микроструктура материала наружной (а) и внутренней (б) оболочек твэла 38 с топливом UO₂+Mg после облучения и хранения в течение 15 – 22-х лет

С внешней стороны наружной оболочки твэлов № 8 и № 38 после хранения в течение 15 – 22-х лет в нижней, средней и верхней частях обнаружены отдельные участки с коррозионными дефектами в виде неравномерной фронтальной коррозии, язв и питтингов, глубина которых составляет 6 – 15 мкм (рис. 7 а). С внутренней стороны наружной оболочки (со стороны контакта оболочки с топливом) наблюдаются углубления глубиной 4 – 18 мкм.

Как отмечалось выше, твэлы № 8 и № 38 различались цветом поверхности: твэл № 38 имел поверхность темно-серого цвета, твэл № 8 — светлую поверхность. Металлография показала, что в центральной части наружной оболочки твэла № 38 с поверхностью темно-серого цвета на участке шириной 100 — 120 мкм по границам зерен обнаружены многочисленные выделения (рис. 7 а), в то время как в материале оболочки твэла № 8 со светлой поверхностью выделения по границам зерен отсутствуют.

Следует отметить, что поверхность трех твэлов ОТВС Ж-72 (без длительного хранения) имела окраску темно-серого цвета, а у четвертого твэла поверхность светлая серебристого цвета. В средней части внешней оболочки твэлов этой ОТВС с темной поверхностью по границам зерен также наблюдаются многочисленные выделения, а в материале оболочки твэла со светлой поверхностью эти выделения отсутствуют. Вероятней всего, темная поверхность облученных твэлов после длительного хранения и наличие выделений по границам зерен в материале внешней оболочки этих твэлов обусловлена не эксплуатацией их в реакторе или длительным хранением, а технологией изготовления этих твэлов.

С внутренней стороны внутренней оболочки твэлов № 8 и № 38 на отдельных участках периметра наблюдается неравномерная фронтальная коррозия глубиной 7 – 20 мкм, язвы и питтинги глубиной до 15 мкм (рис. 7 б). С внешней стороны внутренней оболочки (со стороны контакта с топливной композицией) твэлов на отдельных участках их периметра наблюдаются углубления протяженностью по периметру 50 – 100 мкм и глубиной до 10 мкм.



Рис. 8. Микроструктура материала топливной композиции облученных твэлов с UO₂-топливом до (а) и после (б) длительного хранения

В топливной композиции твэлов № 8 и № 38 в магниевой матрице вокруг топливных крупок обнаружены пояски темно-серого цвета шириной 20 – 45 мкм и микротрещины в топливных частицах и магниевой матрице (рис. 8 б). В топливной композиции облученных твэлов, исследованных сразу же после облучения, микротрещины не наблюдаются, а толщина поясков вокруг топливных частиц равна 10 – 30 мкм (рис. 8 а).

Пояски вокруг топливных частиц в матрице дисперсионных твэлов образуются при облучении в реакторе в результате повреждения продуктами деления материала матрицы [17, 18]. Возможен также рост толщины этих поясков в процессе длительного хранения в результате дальнейшего повреждения матрицы α -частицами, вылетающими из топливных крупок.

МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ

В таблице 4 приведены результаты кратковременных механических испытаний материала оболочек твэлов с U-Mo-топливом сразу после облучения и хранения в течение 38-ми лет.

Таблица 4

№ OTBC	Д-85 после облучения	АМК-248 после облучения и 38-летнего хранения	
Оболочка	Наружная	Наружная	Внутренняя
Местоположение образцов	850 мм от низа твэла	850 мм от низа твэла	
Флюенс быстрых нейтронов, 10 ²⁴ м ⁻²	2,05	1,45	
σ₅, МПа	1040 ± 20	990 ± 20	855 ± 35
σ₀₂, МПа	1000 ± 10	810 ± 30	655 ± 25
δ₀, %	22 ± 1	9 ± 4	25 ± 5
Местоположение образцов	100 мм от низа твэла	200 мм от низа твэла	
Флюенс быстрых нейтронов, 10 ²⁴ м ⁻²	1,3	1,1	
σв, МПа	1000 ± 10	1080 ± 10	845 ± 10
σ₀₂, МПа	905 ± 10	895 ± 40	700 ± 30
δ₀, %	21 ± 3	$5{,}5\pm0{,}5$	21 ± 2

Кратковременные механические свойства материала оболочек твэлов с U-Mo-топливом при температуре испытания 25°С

Согласно справочным данным, предел прочности необлученных кольцевых образцов из стали 1X18H10T, испытанных при 25°C, равен 590 МПа, а относительное удлинение – 32%. С увеличением дозы облучения прочностные свойства оболочки возрастают (предел прочности увеличивается до 1040 МПа), а пластичность снижается до 22%. Следует отметить, что в работе [12] при механических испытаниях материала оболочек твэлов с U-Mo-топливом трех OTBC (выгорание топлива 6,7 – 33,5 МВт·сут/кг) сразу после облучения было установлено, что пластичность наружной оболочки меньше, чем внутренней и составляет 3 – 21% и 11,5 – 28% соответственно. Более низкое значение пластичности наружной оболочки по сравнению с внутренней, равное 8,4 – 9,2 и 12% соответственно, наблюдалось и при исследовании твэлов аналогичного типа, облученных в реакторе Белоярской АЭС до выгорания 8 – 12 МВт·сут/кг [19].

В результате длительного хранения прочностные свойства материала оболочек остаются на высоком уровне (σ_в = 990 – 1080 МПа), в то время как пластичность наружной оболочки значительно уменьшается (δ₀ = 5,5%), при этом пластичность внутренней оболочки остается, как и прежде, на высоком уровне (δ₀ = 21 – 25%). Кратковременные механические испытания оболочки твэла № 33 после максимального срока хранения не проводились, но хрупкое разрушение наружной оболочки твэла при приготовлении образцов позволяет утверждать, что пластичность оболочки близка к нулю.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования 50-ти облученных в реакторе АМ твэлов с U-Mo-топливом после хранения в течение 45 – 55-ти лет и 50-ти твэлов с UO₂-топливом после хранения в течение 15 – 22-х лет позволяют сделать следующие выводы.

1. На поверхности наружной оболочки всех исследованных твэлов с двумя различными топливными композициями видимых дефектов не обнаружено.

 После длительного хранения твэлов с U-Мо-топливом наблюдается увеличение диаметра наружной оболочки. Наиболее заметно увеличение диаметра в верхней части твэла. Хранение твэлов с UO₂-топливом в течение 15 – 22-х лет в пределах точности измерений не приводит к изменению их диаметра.

3. На отдельных участках внешней поверхности наружной оболочки и внутренней поверхности внутренней оболочки облученных твэлов с топливными композициями U-Mo+Mg и UO₂+Mg после длительного хранения обнаружены дефекты в виде межкристаллитной и неравномерной фронтальной коррозии, язв и питтингов глубиной до 20 мкм. В местах контакта оболочек твэлов с топливной композицией слоев взаимодействия не обнаружено. Заметного уменьшения толщины наружной и внутренней оболочек твэлов в результате длительного хранения не наблюдается, а толщина оболочек в месте расположения дефектов не выходит за пределы ее минимального исходного значения с учетом технологического допуска на разнотолщинность.

4. В результате длительного хранения для обоих типов твэлов обнаружено образование немногочисленных микротрещин как в топливных крупках, так и в магниевой матрице.

 При хранении твэлов с U-Мо-топливом в течение 45 – 55-ти лет происходит постепенная деградация механических характеристик наружной оболочки твэлов, выражающаяся в снижении ее пластических характеристик.

Литература

1. Солонин М.И., Иолтуховский А.Г., Велюханов В.П. 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.

2. 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.

3. Сидоренко В.А. Концептуальные аспекты развития ядерной энергетики до 2010 г.//Атомная энергия. – 1994. – Т. 76. – Вып. 4. – С. 259-263. Электронный ресурс: http://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t76-4_1994/go,2/ (дата доступа 07.05.2022).

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

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

6. ИНЕС. Руководство для пользователей международной шкалы ядерных и радиологических событий, издание 2008 г. – Вена: МАГАТЭ, 2010.

7. *Мухамадеев Р.И., Баранаев Ю.Д., Суворов А.П*. Тяжелая запроектная авария РУ ЭГП-6 Билибинской АЭС. Анализ последствий для населения. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2018. – № 2. – С. 89-100. DOI: https://doi.org/10.26583/npe.2018.2.09.

8. Парафило Л.М., Мухамадеев Р.И., Баранаев Ю.Д., Суворов А.П. Анализ тяжелой запроектной аварии РУ ЭГП-6 Билибинской АЭС. Формирование источника выброса. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2018. – № 1. – С. 99-111. DOI: https://doi.org/ 10.26583/npe.2018.1.10.

9. Иванов С.Н., Поролло С.И., Баранаев Ю.Д., Тимофеев В.Ф., Харизоменов Ю.В. Коррозионные испытания в водной среде твэлов, облученных в реакторе Первой в мире АЭС. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2019. – № 3. – С. 120-134. DOI: https:// doi.org/10.26583/npe.2019.3.11.

10. Гаязов А.З., Лещенко А.Ю., Смирнов В.П., Ильин П.А., Теплов В.Г. Исследование образования горючих газов и выхода радионуклидов при обращении с ОЯТ реактора АМ под водой. // Известия вузов. Ядерная энергетика № 2, 2021, с. 71-82. DOI: https:// doi.org/10.26583/npe.2021.2.07.

11. Гаязов А.З., Комаров С.В., Лещенко А.Ю. и др. Исследование образования водорода и выхода радионуклидов при хранении разрушенного оксидного ОЯТ во влажной среде. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2018. – № 3. – С. 125-136. DOI: https:// doi.org/10.26583/npe.2018.3.11.

12. Ибрагимов Ш.Ш., Сыщиков Л.А., Воронин И.М., Кудряшов В.Г. Исследование отработавших тепловыделяющих элементов Первой атомной станции. // Атомная энергия. — 1963. — Т. 14. — Вып. 5. — С. 465-468. Электронный ресурс: http:// elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t14-5_1963/go,32/ (дата доступа 07.05.2022).

13. Иванов С.Н., Дворяшин А.М., Попов В.В., Поролло С.И., Шулепин С.В. Послереакторные исследования ТВС и канала СУЗ реактора Первой в мире АЭС.// Атомная энергия. – 2011. – Т. 110. – Вып. 2. – С. 70-78. Электронный ресурс http://elib.biblioatom.ru/ text/atomnaya-energiya_t14-5_1963/go,32/ (дата доступа 07.05.2022).

14. Ivanov S.N., Dvoriashin A.M., Shulepin S.V., Porollo S.I., Velichko V.V. Application of scanning electron microscopy and X ray microanalysis for investigation pins of the world's first power plant. / Proc. of the Techn. Com. Meeting of Advanced Post-Irradiation Examination Techniques for Water Reactor Fuel. Dimitrovgrad, 14-18 May 2001. – IAEA-TECDOC-1277, 2002. – PP. 137-145. Электронный pecypc: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/33/018/33018348.pdf (дата доступа 07.05.2022).

15. 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. Электронный ресурс: http://elib.biblioatom.ru/text/atomnaya-energiya_t88-3_2000/go,3/ (дата доступа 07.05.2022).

16. *Ушаков Г.Н.* Первая атомная электростанция (опыт строительства и эксплуатации). – М.-Л.: Госэнергоиздат, 1959. – 185 с.

17. Вебер С.Ф., Гирш А.В. Тепловыделяющие элементы дисперсионного типа. / Доклады иностранных ученых на Международной конференции по мирному использованию атомной энергии «Металлургия ядерной энергетики и действия облучения на материалы», Женева 1955. – М.: Государственное научно-техническое издательство по черной и цветной металлургии, 1956. – С. 298-304.

18. Самойлов А.Г., Каштанов А.И., Волков В.С. Дисперсионные тепловыделяющие элементы ядерных реакторов. – М.: Атомиздат, 1969. – 583 с.

19. *Цыканов В.А., Давыдов Е.Ф.* Радиационная стойкость тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. – М.: Атомиздат, 1977. – 136 с.

Поступила в редакцию 11.05.2022 г.

Авторы

<u>Иванов</u> Сергей Николаевич, ведущий научный сотрудник, канд. техн. наук E-mail: porollo@ippe.ru

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

<u>Шулепин</u> Сергей Викторович, заместитель директора ОИРМиТ E-mail: ympev@ippe.ru

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

<u>Тимофеев</u> Владимир Фёдорович, ведущий инженер E-mail: vtimofeev@ippe.ru

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

UDC 621.039.59

EXAMINATION OF FUEL ELEMENTS IRRADIATED IN THE REACTOR OF THE WORLD'S FIRST NPP AFTER LONG-TERM STORAGE

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

IPPE JSC

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

ABSTRACT

Examinations of fuel elements with two different fuel compositions, U-Mo+Mg and UO_2+Mg , irradiated in the AM reactor after their long-term storage do not reveal any visible defects on the surface of their outer claddings. However, in the fuel elements with U-Mo fuel, an increase in the diameter of the outer cladding is observed. This is most noticeable in the upper part of the fuel element. Storage of the fuel elements with UO_2 fuel for 15 - 22 years does not lead to a change in their diameter within the measurement accuracy. At the same time, metallographic studies have shown that on the external surface of the outer cladding and the internal surface of the inner cladding of the fuel elements with U-Mo+Mg and UO_2+Mg fuel compositions, after long-term storage, defects are observed in the form of intergranular and irregular frontal corrosion, pits and pittings up to 20 mm deep. No interaction is found at the points of contact between the fuel claddings and the fuel composition of the layers.

There is no noticeable decrease in the thickness of the outer and inner claddings of the fuel elements after long-term storage, nor does the thickness of the claddings at the locations of defects go beyond its minimum initial value, taking into account the technological tolerance for variations in thickness. It is noteworthy, however, that cracks are found in both types of fuel elements both in the fuel grains and in the magnesium matrix. As a result of long-term storage of the fuel elements with U-Mo fuel for 45 - 55 years, the mechanical properties of their outer claddings gradually degrade, due to which the plasticity of the cladding is significantly reduced.

Key words: long-term storage, fuel assembly (FA), fuel element, cladding, corrosion, fuel composition, metallographic studies, mechanical properties.

REFERENCES

1. Solonin M.I., Ioltukhovsky 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 Nuclea Fuel of RBMK-1000. *Proc. of the VIth Russian Conference on Reactor Materials*. Dimitrovgrad, 11-15 Sept., 2000, v. 2, no. 2, pp. 3-22 (in Russian).

2. Volkova I.N., Grin P.I., Kobylyansky 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, v. 2, no. 1, pp. 258-266. (in Russian).

3.. Sidorenko V.A. Conceptual Aspects of Nuclear Power Development in Russia up to 2010. *Atomic Energy*. 1994, v. 76, iss.4, pp. 253-257; DOI: https://doi.org/10.1007/BF02422952.

4. 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, pp. 253-288 (in Russian).

5. 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, pp. 288-300 (in Russian).

6. The International Nuclear Event Scale (INES) User's Manual 2008 Edition. Jointly prepared by IAEA and OECD/NEA. International Atomic Energy Agency, Vienna, 2010.

7. Mukhamadeev R.I., Baranaev Yu.D., Suvorov A.P. Severe Beyond Design Basis Accident on Bilibino NPP EGP-6 Reactor. Analysis of Consequences of the Radiological Accident for Public. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2018, no.2, pp. 89-100; DOI: https://doi.org/10.26583/npe.2018.2.09 (in Russian).

8. Parafilo L.M., Mukhamadeev R.I., Baranaev Yu.D., Suvorov A.P. Analisis of Severe Beyond Design Basis Accident for the EGP-6 Reactor Facility at Bilibino NPP. Release Source Term Formation. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2018, no. 1, pp.99-111; DOI: https://doi.org/10.26583/npe.2018.1.10 (in Russian).

9. Ivanov S.N., Porollo S.I., Baranaev Yu. D., Timofeev V.F., Kharizomenov Yu.V. Corrosion Tests in Water of Fuel Pins Irradiated in the World's First NPP Reactor. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2019, no. 3, pp.120-134; DOI: https://doi.org/10.26583/ npe.2019.3.11 (in Russian).

10. Gaiazov A.Z., Leshchenko A.Yu., Smirnov V.P., Ilyin P.A., Teplov V.G. A Study of Flammable Gas Generation and Radionuclide Release During Underwater Handling of AM Reactor Spend Fuel. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2021, no. 2, pp. 71-82; DOI: https://doi.org/10.26583/npe.2021.2.07 (in Russian).

11. Gaiazov A.Z., Komarov S.V., Leshchenko A.Yu., Revenko K.E., Smirnov V.P., Zvir E.A., Ilyin P.A., Teplov V.G. Study of Hydroged Gas Generation and Radionuclide Release During Wet Damaged Oxide Spend Fuel Storage. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2018, no. 3, pp.125-136; DOI: https://doi.org/10.26583/npe.2018.3.11 (in Russian).

12. Ibragimov Sh.Sh., Syshchikov L.A., Voronin I.M., Kudryishov V.G. Study of Spent Fuel Elements from the First Atomic Electric Station. *Atomic Energy*. 1964, v. 14, iss. 5, pp. 482-485; DOI: https://doi.org/10.1007/BF01121892.

13. Ivanov S.N., Dvoryashin A.M., Popov V.V., Porollo S.I., Shulepin S.V. Post-Reactor

Studies of Fuel Assemblies and a Control-and-Safety System Channel of the Reactor in the First in the World Nuclear Power Plant. *Atomic Energy*. 2011, v.110, iss. 2, pp. 82-92; DOI: https://doi.org/10.1007/s10512-011-9395-3.

14. Ivanov S.N., Dvoriashin A.M., Shulepin S.V., Porollo S.I., Velichko V.V. Application of Scanning Electron Microscopy and X Ray Microanalysis for Investigation Pins of the Worid's First Power Plant. *Proc. of the Techn. Com. Meeting of Advanced Post-Irradiation Examination Techniques for Water reactor Fuel*. Dimitrovgrad, 14-18 May 2001, IAEA-TECDOC-1277, 2002, pp. 137-145. Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/33/018/33018348.pdf (accessed May 7, 2022).

15. Ivanov S.N., Konobeev Yu.V., Starkov O.V., Porollo S.I., Dvoryashin A.M. & Shulepin S.V. Materials-Technology Investigations of Fuel Elements, Irradiated in a Reactor at the Obninsk Nuclear Power Plant, After Standing for 38 Years in a Depository. *Atomic Energy*. 2000, v. 88, pp. 184-189; DOI: https://doi.org/10.1007/BF02673157.

16. Ushakov G.N. World First Nuclear Power Plant (Construction and Operation Experience). Moscow-Leningrad. Gosenergoizdat Publ., 1959, 185 p. (in Russian).

17. Weber C.F., Girsh A.V. Dispersive Fuel Pins. *In Proc. of the Intern. Conf. on the Peace Use of Atomic Energy, 1955, Geneva*. Moscow. Gosudarsnvennoe Nauchno-Tekhnicheskoe Izdatel'stvo po Chyornoy i Tsvetnoy Metallurgii Publ., 1956, pp. 298-304 (in Russian).

18. Samojlov A.G., Kashtanov A.I., Volkov V.S. *Dispersive Fuel Pins of Nuclear Reactors*. Moscow. Atomizdat Publ., 1969, 583 p. (in Russian).

19. Tsykanov V.A., Davydov E.F. *Radiation Resistance of Fuel Pins of Nuclear Reactors*. Moscow. Atomizdat Publ., 1977, 136 p. (in Russian).

Authors

<u>Ivanov</u> Sergey Nikolaevich, Leading Research Associate, Cand. Sci. (Engineering) E-mail: porollo@ippe.ru

<u>Porollo</u> Sergey Ivanovich, Leading Research Associate, Cand. Sci. (Engineering) E-mail: porollo@ippe.ru

<u>Shulepin</u> Sergey Viktorovich, Deputy Director E-mail: ympev@ippe.ru

<u>Baranaev</u> Yury Dmitrievich, Head of Laboratory E-mail: baranaev@ippe.ru

<u>Timofeevв</u> Vladimir Fedorovich, Leading Engineer E-mail: vtimofeev@ippe.ru

<u>Kharizomenov</u> Yury Viktorovich, Leading Engineer E-mail: Charizomenov@ippe.ru