

РАЗДЕЛ ТРЕТИЙ:

РАБОТОСПОСОБНОСТЬ СПЛАВОВ ЦИРКОНИЯ КАК КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА.

ИЗМЕНЕНИЕ СВОЙСТВ МАТЕРИАЛА ТРУБ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ КАНАЛОВ И КАНАЛОВ СУЗ В ПРОЦЕССЕ ЭКСПЛУАТАЦИИ В РЕАКТОРАХ ТИПА РБМК

*Е.П.Рязанцев, П.А. Платонов, А.В. Рязанцева, А.Н. Иванов, Л.В. Семенова,
Российский Научный Центр "Курчатовский институт", Москва, Россия*

Приведен анализ результатов внутрореакторных обследований послереакторных исследований канальных труб, извлеченных из реакторов Ленинградской и Курской АЭС после длительной эксплуатации

Пуск первого реактора из серии РБМК состоялся на Ленинградской АЭС в декабре 1973г. В последующие годы были введены в строй действующих еще 3 реактора на Ленинградской АЭС, 4 - на Курской АЭС, 3 - на Смоленской АЭС, 4 - на Чернобыльской АЭС - все электрической мощностью 1000 МВт, и 2 реактора на Игналинской АЭС - электрической мощностью 1500 МВт. В настоящее время все реакторы, за исключением Чернобыльской АЭС, продолжают эксплуатироваться (на ЧАЭС работает только 3-й энергоблок).

Все трубы технологических каналов (ТК) и каналов системы управления и защиты (КСУЗ) в реакторах типа РБМК изготовлены из сплава циркония с 2,5% ниобия. Условия их эксплуатации в реакторах РБМК-1000 приведены в табл. 1. В конце 70-х годов исследованиями, проведенными в РНЦ "Курчатовский институт", было показано, что через 15 - 18 лет эксплуатации в реакторах РБМК 1000 произойдет исчерпание диаметального зазора между циркониевыми трубами технологических каналов и графитовой кладкой. Позднее этот прогноз был подтвержден непосредственными измерениями внутреннего диаметра технологических каналов и блоков графитовой кладки на Ленинградской и Курской АЭС. Явление исчерпания диаметального зазора было положено в основу при решении вопроса о замене ТК на первых блоках РБМК указанных АЭС. К настоящему времени частично или

полностью заменены ТК в реакторах 1, 2 и 3 блоков на Ленинградской АЭС и в реакторах 1 и 2 блоков на Курской АЭС. Что касается каналов СУЗ, то они продолжают эксплуатироваться с начала пуска и, возможно, не будут заменяться до конца службы реактора. Регулярно проводимые послереакторные исследования труб позволяют осуществлять контроль за кинетикой изменения свойств материала и прогнозировать дальнейшую работоспособность каналов. В ходе комплексных послереакторных исследований изучается коррозионная стойкость каналов, их гидрирование, определяются механические свойства, оценивается диаметральная деформация труб, уровень остаточных напряжений, проводятся структурные и другие исследования.

Опыт многочисленных исследований свойств материала труб ТК и КСУЗ показывает, что в процессе эксплуатации реакторов происходит постепенное изменение структуры и свойств материала труб, одновременно с этим за счет деформации (ползучести, радиационного роста) изменяется форма и размеры труб ТК. Вместе с тем после продолжительной эксплуатации циркониевые каналы сохраняют высокую надежность, и по комплексу свойств циркониевый сплав с 2,5% ниобия демонстрирует возможность дальнейшей эксплуатации. Результаты некоторых послереакторных исследований представлены ниже.

Таблица 1.

Условия эксплуатации ТК и КСУЗ в реакторах типа РБМК-1000

Наименование	Тип канала	
	ТК	КСУЗ
Геометрические размеры трубы, мм	88x4	88x3
Среда снаружи канала	азотно-гелиевая смесь	
Рабочая среда внутри канала	вода	
Давление в средней части канала, кПа	82	4
Напряжение в трубе, МПа	86	6
Температура на выходе канала, °С	288	50-75
Температура наружной стенки трубы, °С	355	48-63
Поток быстрых нейтронов с энергией $E > 1$ МэВ в средней части канала, н/м ² с.	$1,5 \cdot 10^{17}$	$(2,5-3,5) \cdot 10^{16}$

К настоящему времени максимально достигнутый при эксплуатации флюенс быстрых нейтронов с энергией $E \geq 1$ МэВ для исследованных ТК составил $7 \cdot 10^{25}$ н/м² а КСУЗ - $1,25 \cdot 10^{25}$ н/м².

Коррозионное состояние труб в реакторах РБМК контролируется при периодических внутриреакторных обследованиях поверхности каналов и по результатам послереакторных исследований. Вместе с тем опыт внутриреакторных обследований показывает, что после длительной эксплуатации поверхность всех каналов покрыта значительным слоем железо-оксидных отложений бурого цвета - продуктов коррозии контура, в связи с чем при осмотре в реакторе не удается оценить реальное состояние труб (рис.1). Одинаковая по виду под слоем отложений поверхность различных труб только после удаления отложений приобретает характерные особенности.

Исходя из изложенного, становится очевидным, что регулярно осуществляемый внутриреакторный осмотр ТК, как контрольная операция, может быть полезным лишь в начальный период эксплуатации, когда слой отложений или отсутствует, или очень не-

большой. Для оценки фактического коррозионного состояния труб следует ориентироваться на данные послереакторных исследований.

Анализ результатов послереакторных исследований канальных труб, извлеченных из реакторов Ленинградской и Курской АЭС после длительной эксплуатации, показывает, что явных различий в коррозионном состоянии каналов не наблюдается.

Как известно, по виду оксидных пленок на поверхности циркониевых сплавов можно в значительной мере судить о коррозионном состоянии труб. Так, наличие на поверхности плотных защитных пленок черного или темно-серого цвета говорит о высокой коррозионной стойкости материала, тогда как появление светлых, рыхлых, а затем расслаивающихся и осыпающихся оксидов свидетельствует об ухудшении коррозионных свойств. Что касается окисления канала со стороны реакторного пространства, то во всех случаях, независимо от места и длительности эксплуатации (конечно, в исследованных пределах) коррозионное состояние наружной поверхности труб оценивается как вполне удовлетворительное: на всех

трубах формируются черные или темно-серые блестящие, плотно сцепленные с поверхностью металла равномерные защитные оксидные пленки (рис. 2). Почти повсемест-

но толщина оксидных пленок на трубах со стороны реакторного пространства составляет от 1 до 5 мкм.

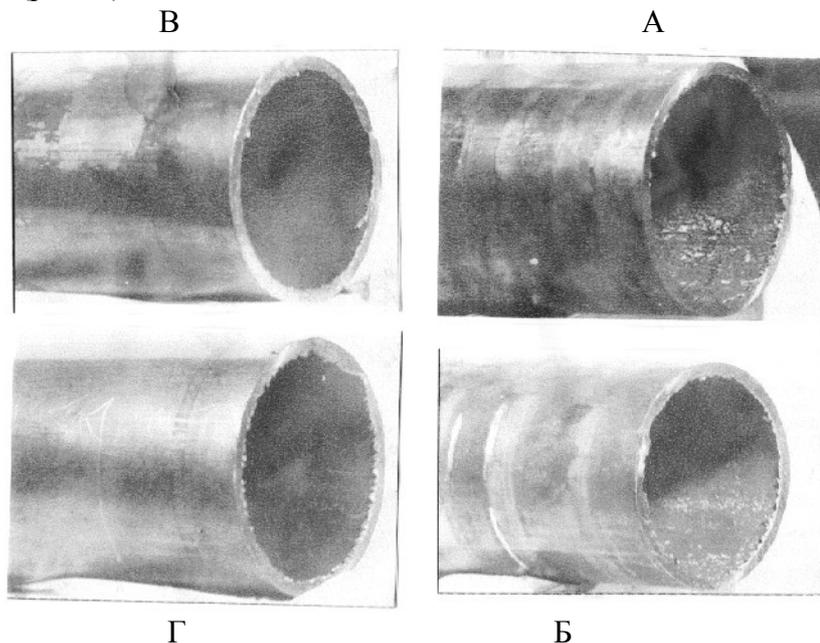


Рис.: 1. Внешний вид участков трубы ТК после 16 лет эксплуатации: а и б - середина активной зоны, в - выше активной зоны, г - ниже активной зоны

Характерным для всех исследованных каналов является наличие в средней части трубы чередующихся относительно темных и светлых поперечных поясков, шириной 20 мм, что обусловлено разной степенью окисления циркония под графитовыми кольцами, установленными на трубу попеременно плотно и с зазором, а в верхней и нижней частях труб выделяются участки, ограниченные графитовыми втулками длиной 280 мм. Наиболее важной составляющей при оценке коррозионного состояния технологических каналов является коррозионное поведение материала труб со стороны теплоносителя, т. е. внутренней поверхности.

вых труб технологических каналов реакторов РБМК-1000 не вызывало беспокойства: на внутренней поверхности формировались равномерные оксидные пленки серого цвета толщиной не более 10 мкм. Однако при исследовании канальных труб ТК после ≈ 13 лет эксплуатации в реакторах Ленинградской и Курской АЭС было впервые обнаружено усиление коррозии, и установлено, что толщина оксидов на отдельных участках трубы в пределах активной зоны достигала 500 мкм.



Рис. 2. Вид поверхности патрубков центральной части ТК после 16 лет эксплуатации

В течение 10 лет эксплуатации коррозионное поведение отожженных цирконие-

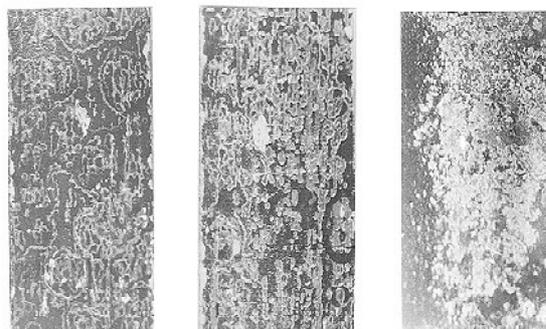


Рис. 3. Состояние внутренней поверхности средней части ТК после 16 лет эксплуатации на I энергоблоке Ленинградской АЭС
Исследования труб ТК после ≈ 16 лет эксплуатации (максимальное время) показали,

что вне активной зоны на внутренней поверхности труб формируются равномерные темно-серые оксидные пленки. По мере приближения к краю активной зоны на поверхности появляются вначале единичные, а затем многочисленные светлые точечные образования. В пределах активной зоны внутренняя поверхность труб (рис.3) покрыта неоднородной оксидной пленкой серого цвета с белыми пятнами-участками частично отслоившихся оксидов. Количество и размер светлых участков по высоте и периметру различные. В некоторых местах - это отдельные точечные пятна, в других они сливаются в протяженные полосы или крупные пятна; имеются также зоны, где наблюдается практически сплошь светлая оксидная пленка. При металлографическом исследовании (рис. 4) было выявлено, что окисление внутренней поверхности материала трубы происходит неравномерно. Оксиды - светлые пятна, занимающие значительную часть поверхности, распространяются вглубь металла линзообразно. На исследуемых трубах после $\cong 16$ лет эксплуатации диаметр отдельных пятен-линз составляет от 0,5 до 5 мм, а максимальная толщина оксидного слоя в них колеблется от 300 до 500 мкм. На перемычках, соединяющих линзообразные участки (соответствуют поверхности серого цвета), толщина оксидов изменяется от 50 до 200 мкм. Образующиеся на поверхности труб оксиды - пористые, слоистые, легко скалывающиеся, особенно при большой их толщине.

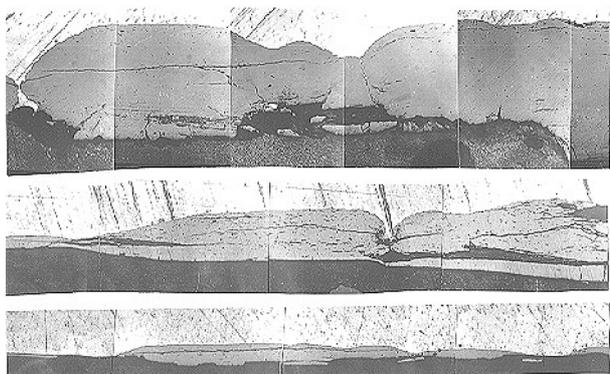


Рис. 4. Вид оксидных пленок со стороны теплоносителя на трубах ТК после 16 лет эксплуатации, $x 50 \times 2$.

При исследовании каналов, извлеченных из реактора 3-его энергоблока после 15,5 лет работы, отмечено, что значительная часть отложений вместе с верхними слоями оксидов осыпалась. Удалению верхнего слоя оксидов способствовала осуществленная перед капитальным ремонтом дезактивация контура.

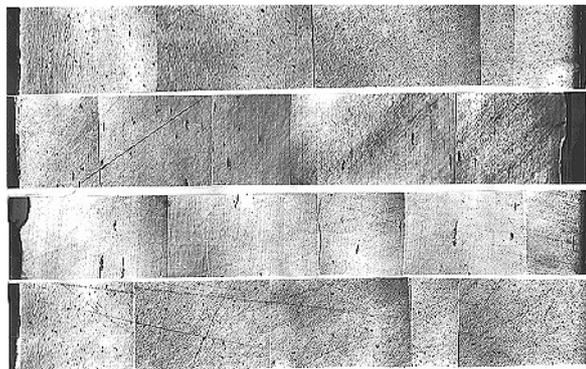


Рис. 5. Гидридные выделения по толщине стенки труб ТК после 16 лет эксплуатации, $x 32 \times 2$

Уместно отметить важную особенность сплава Zr-2,5 мас.% Nb: при отслаивании оксидных пленок поверхность металла никогда не оголяется, на поверхности всегда сохраняется тонкий плотный защитный слой оксида, препятствующий катастрофическому развитию процесса окисления и обеспечивающий в течение длительного времени при эксплуатации умеренные скорости коррозии. Распределение гидридной фазы в материале труб по толщине стенки довольно равномерное, расположение гидридов либо тангенциальное, либо хаотическое (рис.5).

На участках, расположенных в непосредственной близости к внутренней поверхности трубы с глубокой коррозией, наблюдается переориентация гидридов в неблагоприятном радиальном направлении (рис. 6). Содержание водорода в материале отожженных труб ТК после длительной эксплуатации на участках с умеренной коррозией невысокое, и не превышает 50 ppm. Вместе с тем, при послойном анализе выяснилось, что на участках трубы с глубокими коррозионными поражениями концентрация водорода достигает 70 и даже 100 ppm и более.

Обнаружено также, что в слоях металла, прилегающих к оксидным пленкам большой толщины, микротвердость примерно на 10% выше, чем в слоях, прилегающих к наружной поверхности. Это обстоятельство, вероятно, обусловлено более высоким содержанием кислорода и водорода в приповерхностных слоях. Что касается каналов СУЗ, то несмотря на отсутствие в них коррозии, в процессе эксплуатации наблюдается наводороживание труб. Концентрация водорода в сплаве возрастает в несколько раз: с 4 - 8 ppm до 15 ppm, а в отдельных случаях до 40 ppm. При изучении коррозионного поведения материала канальных отожженных труб особое внимание было уделено областям, соответствующим дистанционирующим решеткам на тепловыделяющих кассетах.

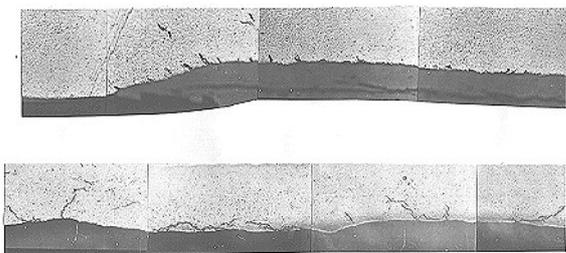


Рис. 6. Ориентация гидридов вблизи внутренней поверхности трубы ТК на участках с глубокими коррозионными поражениями, х 200 х 2

Дистанционирующие решетки в количестве 22 шт располагаются по высоте кассет с шагом 360 мм. Изготовлены они из полосок нержавеющей стали толщиной 0,3 мм и шириной 16 мм (рис. 7).

В течение многих лет при внутриреакторных обследованиях каналов напротив решеток выявлялись кольцевые пояски шириной 35-40 мм, отличавшиеся по коррозионному состоянию от остальной поверхности (рис.8). К тому же на профилограммах, полученных при внутриреакторных измерениях диаметра труб, практически всегда регистрировались с шагом 360 мм пиковые изменения диаметра значительно большей величины, чем на соседних участках (рис. 9). Максимальная величина пиков на профилограммах после 4-х лет эксплуатации составляла 70 - 80 мкм, после 10 лет работы достигала 400 мкм, а после 16 лет - 600 мкм. Следует заметить, что длительное время на профилограммах реги-

стрировались лишь пики, направленные в сторону меньшего диаметра, но в последние годы нередко наряду с пиками привычного вида обнаруживались как бы опрокинутые пики, т.е. направленные в сторону увеличения диаметра.

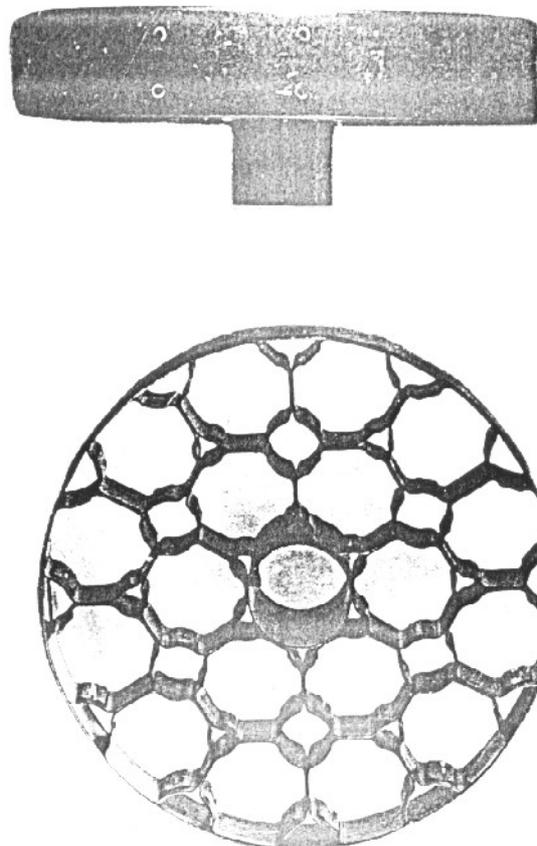


Рис. 7. Вид дистанционирующей решетки топливной сборки для реакторов типа РБМК-1000

Для выяснения вопросов, связанных с коррозией материала труб на этих участках, были выбраны 2 канала из реактора ЛАЭС-2 : один канал (рис.10), на профилограмме которого наблюдались пики, направленные в сторону меньших значений диаметра, а на профилограмме другого, имелись пики, направленные в сторону больших значений диаметра (рис.11). При подробном осмотре патрубков (см.рис. 10 и11) было выяснено, что ширина коррозионных поясков в обоих случаях составляет 35 - 40 мм, т.е. в 2 - 2,5 раза шире дистанционирующей решетки, а коррозионное состояние этих участков было различным. Различным коррозионным состоянием материала труб в пределах этих

поясков легко объясняется разница, наблюдаемая на профилограммах: на одном образце имеется толстый слой светлых оксидов, уменьшающий диаметр трубы, а на другом образце оксидная пленка почти полностью отслоилась, образовав кольцевое углубление в стенке трубы (увеличение диаметра).



Рис. 8. Внешний вид внутренней поверхности трубы на участке, соответствующем положению дистанционирующей решетки после 16 лет эксплуатации

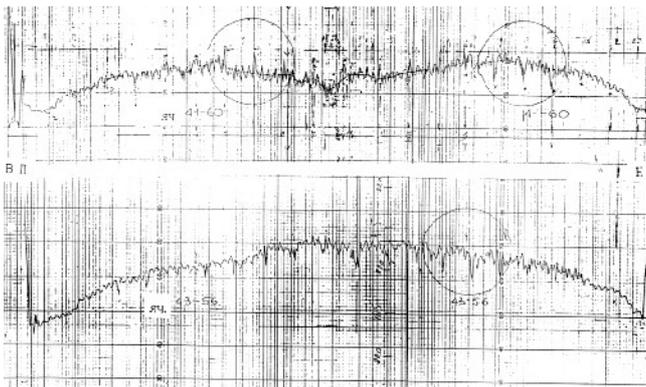


Рис. 9. Профилограммы внутреннего диаметра канальных труб ТК после 16,5 лет эксплуатации на 2 энергоблоке Ленинградской АЭС

Следует отметить, что в пределах широкого пояса (35-40 мм) кольцевые участки шириной 16 мм, расположенные прямо напротив стальных решеток, по коррозионному состоянию лишь незначительно уступают состоянию материала трубы вне поясков, тогда как на участках шириной 20-25 мм, расположенных выше решеток, обнаружена наибольшая степень коррозии: здесь наблюдаются оксиды толщиной до 800 мкм. Результаты исследований позволяют заключить, что усиление коррозии связано с дистанционирующими решетками, но обу-

словлено не близостью нержавеющей стали, а провоцируется накапливающимися у решеток отложениями продуктов коррозии контура.

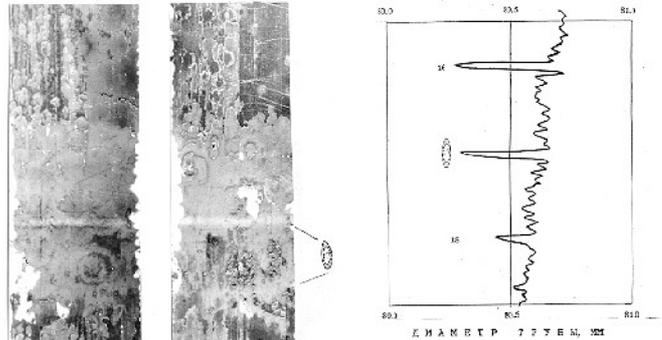


Рис. 10. Фрагмент профилограммы внутреннего диаметра трубы ТК ЛАЭС-2 после 16 лет эксплуатации на уровне 17-ой дистанционирующей решетки

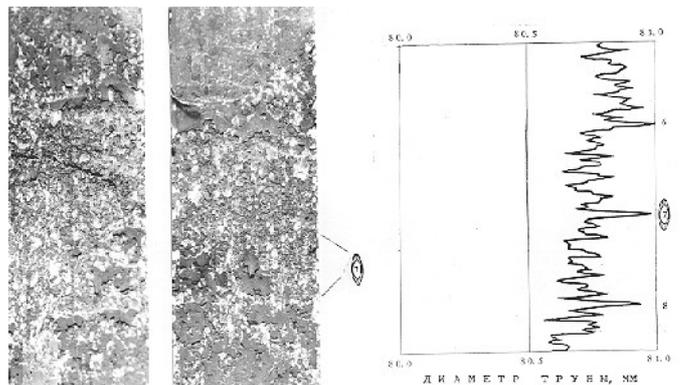


Рис. 11. Фрагмент профилограммы внутреннего диаметра трубы ТК ЛАЭС-2 после 16 лет эксплуатации на уровне 7-ой дистанционирующей решетки

Наличие значительного слоя железокислородных отложений на участках труб способствует локальному изменению под ним состава коррозионной среды, делает ее более агрессивной, что в свою очередь ускоряет процессы коррозии. Таким образом, результаты коррозионных исследований канальных труб после эксплуатации в реакторах отчетливо свидетельствуют о все более возрастающем влиянии на работоспособность каналов коррозионного состояния труб и связанного с ним наводороживания материала. В связи с этими обстоятельствами вопросам коррозии материала при оцен-

ке остаточного ресурса эксплуатации технологических каналов реакторов РБМК следует уделять очень серьезное внимание. Анализ данных многочисленных механических испытаний кольцевых образцов труб показывает, что изменение свойств сплава Zr-2,5%Nb характеризуется в целом увеличением прочности и снижением пластичности по сравнению с исходным состоянием (рис. 12,13). Как следует из результатов исследований, материал труб ТК и КСУЗ сохраняет достаточный уровень кратковременных механических свойств.

Так, после облучения труб ТК флюенсом $(6-7) \cdot 10^{25}$ н/м² (16 лет) их механические свойства при 20°C характеризуются следующими значениями: предел прочности, МПа - 580 - 646 ;условный предел текучести, МПа - 518 - 612; общее относительное удлинение 5,30- 8,55; равномерное относительное удлинение, % 0,55 - 1,95. Механические свойства при 20°C материала труб КСУЗ, облученных флюенсом $(1,20 - 1,25) \cdot 10^{25}$ н/м² характеризуются: следующими значениями: предел прочности, МПа - 729 - 837 ;

условный предел текучести, МПа 709- 812; общее относительное удлинение, % - 6,1 - 7,1;

равномерное относительное удлинение, % 0,56 - 1,28. Вместе с тем при анализе данных механических испытаний материала труб после различного времени эксплуатации были обнаружены некоторые особенности: степень упрочнения сплава после относительно короткого времени эксплуатации (4 -10 лет) существенно выше, чем после длительного времени облучения (13 - 16 лет). На самом деле эффект кажущегося разупрочнения связан с ускорением коррозии и обусловлен следующими обстоятельствами. При расчете прочностных характеристик площадь поперечного сечения разрывных образцов оценивалась, исходя из полной изморенной толщины стенки трубы, включающей толщину оксидного слоя. Толщина этого слоя при длительной эксплуатации составляла » 10% и более от общей толщины стенки. Учитывая, что при механических испытаниях прочностные характеристики

определяются лишь свойствами металла без оксида ("живым" сечением), следует при определении значений предела прочности и предела текучести делать поправку на толщину оксида.

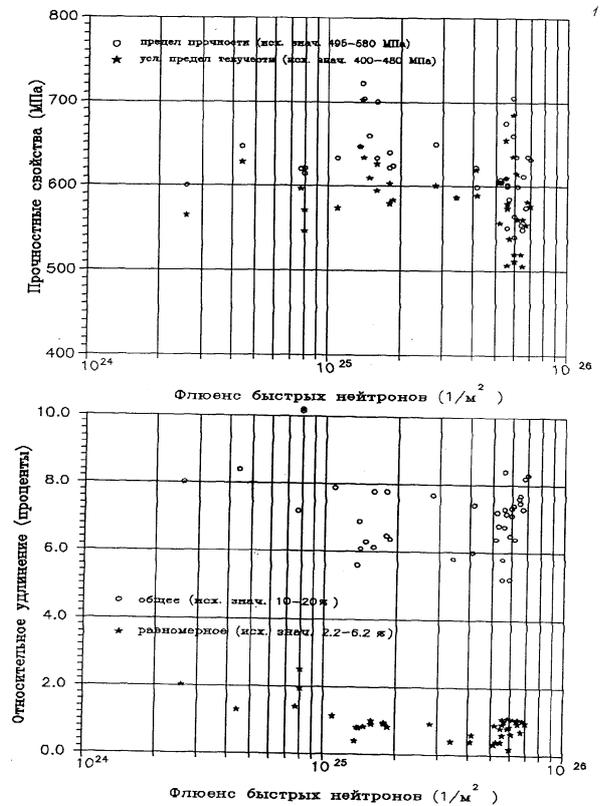


Рис. 12. Изменение механических свойств труб ТК в зависимости от флюенса быстрых нейтронов с энергией $E \geq 1$ МэВ.

Если учесть при оценке прочности уменьшение толщины металла за счет коррозии, то окажется, что значения прочностных характеристик материала труб по крайней мере, начиная с 4 лет облучения в реакторе, в течение длительного времени остаются на одном уровне, т.е. в стадии насыщения. Сопоставление свойств труб КСУЗ, облученных флюенсом $(1,00 - 1,25) \cdot 10^{25}$ н/м² в процессе эксплуатации в течение 16 - 19 лет, и свойств материала труб ТК, облученного до сопоставимых уровней флюенса - $(1,5-25 1,9) \cdot 10^{25}$ н/м² и имеющего удовлетворительную степень коррозии, свидетельствует (табл. 2): упрочнение сплава Zr-2,5%Nb при низкотемпературном облучении происходит в большей мере, чем при температуре теплоносителя (300°C), при этом снижение пластических характеристик примерно одина-

ковое. При определении диаметальной деформации исследуемых труб ТК измерялся наружный диаметр патрубков. Усредненные результаты измерений наружного диаметра патрубков сравнивались со значениями внутреннего диаметра этих же участков ТК, оцененными по профилограммам.

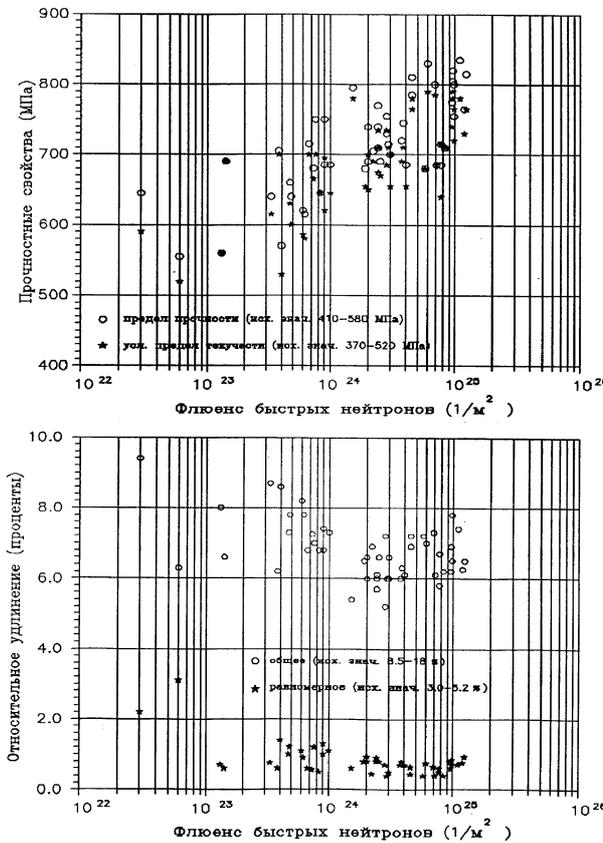


Рис. 13. Изменение механических свойств труб КСУЗ в зависимости от флюенса быстрых нейтронов с энергией $B \geq 1 \text{ МэВ}$.

Во всех рассматриваемых случаях на одних и тех же участках обнаруженная величина деформации наружного диаметра канальной трубы была меньше деформации ее внутреннего диаметра (в обоих случаях деформация оценивалась по отношению к исходным номинальным значениям диаметров). Поскольку утонение стенки ТК за счет процессов радиационного роста и ползучести ничтожно мало, и величиной ее деформации можно пренебречь, вполне очевидно, что увеличение наружного и внутреннего диаметров труб для одного сечения трубы должно быть одинаковым. Наблюдаемая разница величины изменения наружного и внутреннего диаметров обусловлена усиленной коррозией внутренней поверхности труб и отслаивани-

ем оксидов. За счет отслаивания слоя оксидов увеличивается внутренний диаметр, что создает впечатление большей деформации. Таким образом при оценке деформации труб по изменению внутреннего диаметра следует делать поправку с учетом их коррозионного состояния.

Таблица 2. Механические свойства труб КСУЗ и ТК при 20°C

Тип канала	Время эксплуатации, годы	Флюенс быстрых нейтронов ($E > 1 \text{ МэВ}$) n/m^2	Механические свойства			
			Rm, МПа	Rp02, МПа	An, %	Ag, %
КСУЗ	16-19	$(1,00-1,25) \cdot 10^{25}$	729-837	709-812	6,1-7,1	0,56-1,28
			792	757	6,6	0,74
ТК	4,5	$(1,50-1,90) \cdot 10^{25}$	614-711	583-641	5,9-6,7	0,62-1,04
			654	606	6,3	0,61

Изменение величины окружной деформации патрубков, расположенных по высоте ТК, хорошо коррелирует с данными по флюенсу, достигнутому при облучении в процессе эксплуатации. Максимальная окружная деформация труб ТК за ≈ 16 лет эксплуатации составила 1,40-1,45% или 0,12-0,13 мм/ 10^3 МВт.сут.

Интерес к проблеме, касающейся остаточных напряжений в трубах, возник в начале 80-х годов, когда стало ясным, что разгерметизация циркониевых труб происходит по механизму замедленного гидридного растрескивания, и решающее значение при этом имело наличие растягивающих остаточных напряжений значительной величины на наружной поверхности труб. Одновременно было установлено, что остаточные напряжения на трубах имелись в исходном состоянии, и формировались на отожженных трубах в процессе отделочной операции правки на стальных валках. Как показали исследования труб того же времени изготовления, что и вышедшие из строя вследствие негерметичности, величина остаточных напряжений на их поверхности достигала 300 - 400 МПа, а в отдельных случаях доходила до 600 МПа. Осуществленные усовершенствования технологии, включавшие замену жестких стальных правочных валков на мягкие полиуретановые, обеспечили существенное снижение уровня остаточных напряжений.

Максимальная величина их при мягком

способе правки не превышала 50 - 60 МПа.

Было установлено, что в процессе эксплуатации технологических каналов под действием температуры и нейтронного потока происходит релаксация остаточных напряжений до безопасного уровня. По результатам исследований отожженных труб ТК фактический уровень остаточных напряжений после 16,5 лет эксплуатации в реакторе не превышает 10 - 50 МПа. Исследование труб КСУЗ после 16 - 19 лет эксплуатации показали, что величина остаточных напряжений может достигать 200 МПа, при этом максимальные напряжения остаточных напряжений сохраняются в верхней и нижней частях канальных труб.

Исследование структуры материала труб ТК - сплава циркония с 2,5% ниобия показали, что облучение не приводит к изменению

размеров зерен, их морфологии, степени рекристаллизации и т.п. Не приводит также к сколь ли бы заметным изменениям размеров и плотности распределения крупных частиц бета - ниобия.

К числу наиболее очевидных изменений, обусловленных облучением, следует отнести появление в структуре материала труб радиационных дефектов.

Размеры и плотность дефектов при прочих равных условиях возрастают с увеличением достигаемых значений флюенсов быстрых нейтронов. Вполне очевидно, что по мере увеличения длительности эксплуатации канальных труб и получении новой информации о свойствах канальных труб меняются наши представления о состоянии облученного материала, возникают новые задачи.