

ИСХОДНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ И РЕЗУЛЬТАТЫ ПОСЛЕРЕАКТОРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ТЕПЛО ВЫДЕЛЯЮЩИХ ЭЛЕМЕНТОВ С МЕТАЛЛИЧЕСКИМ ТОПЛИВОМ

В.С.Красноруцкий, Н.Н.Белаш, В.Р.Татаринев

Научно-технический комплекс «Ядерный топливный цикл», Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», г.Харьков, Украина, e-mail: stcnfc@kipt.kharkov.ua; fax:+38 (0572) 352-754; tel.:+38 (0572) 356-129

Описані конструкція та схема виготовлення тепловиділяючих елементів щепленого варіанту в багат шаровій оболонці, в яких в якості палива використані сплави урану. Представлені результати після реакторних досліджень тепловиділяючих елементів, що пропрацювали в реакторі Першої АЕС (м. Обнінськ) на протязі 1530 діб до випалювання 22,0 МВт діб/кг, які підтверджують перспективність використаних технічних рішень, закладених у їх конструкцію, та технологію виготовлення.

Описаны конструкция и схема изготовления тепловыделяющих элементов сцепленного варианта в многослойной оболочке, в которых в качестве топлива использованы сплавы урана. Представлены результаты послереакторных исследований тепловыделяющих элементов, проработавших в реакторе Первой АЭС (г. Обнинск) в течение 1530 суток до выгорания 22,0 МВт сут/кг, подтверждающие перспективность используемых технических решений, заложенных в их конструкцию и технологию изготовления.

Design and fabrication structure for coupled fuel rods with multi-layer cladding (with Uranium alloy fuel) are described in the report. Results of post-irradiation examination of fuel rods at the First NPP (Obninsk, Russia), for 1530 day-cycle up the 22,0 MWt day/kg burn up are presented in the report. The results confirm long-term perspective of the technical solutions, used for design and fabrication technology.

ВВЕДЕНИЕ

В мировой практике развития ядерной энергетики при разработке новых реакторных установок периодически рассматривается вопрос использования в качестве топлива металлического урана и его сплавов. Считается, что применение такого топлива по сравнению с окисным уменьшит расход природного урана, снизит топливную составляющую приведенных затрат, уменьшит объемы разделительного производства [1-3]. Серьезным препятствием к реализации таких проектов является склонность урана к значительным формоизменениям под облучением и низкая коррозионная стойкость при контакте с водными теплоносителями.

В 80 годы в ННЦ ХФТИ был реализован проект по созданию опытных тепловыделяющих элементов сцепленного варианта в многослойной оболочке с топливом, представляющим собой урановые сплавы с Zr, Nb, Mo и др. Три опытные сборки, укомплектованные такими ТВЭЛами, прошли реакторные испытания, а одна из них была исследована в горячих камерах.

В настоящей работе приведены исходные характеристики тепловыделяющих элементов с металлическим топливом и результаты послереакторных исследований геометрических параметров тепловыделяющих элементов, структуры топливных и конструкционных материалов, входящих в их состав.

1. СХЕМА ИЗГОТОВЛЕНИЯ И КОНСТРУКЦИЯ

Технологическая схема изготовления тепловыделяющих элементов исследованной сборки приведена в работе [4]. По данной схеме топливные стержни мерной длины после изготовления помещали в циркониевые ампулы, герметизировали их и производили центробежное литье, формируя центральную полость и одновременно обеспечивая сцепление топлива с оболочкой топливной секции [5]. Полученные таким образом топливные секции после шлифовки на бесцентрово-шлифовальном станке помещали в несущую циркониевую оболочку, а зазор заполняли силицином, легированным никелем. Данная технологическая схема позволила обеспечить создание тепловыделяющих элементов, в которых реализована следующая концепция: металлическое топливо разделено на герметичные изолированные друг от друга секции; каждая топливная секция имеет компенсационный объем в виде центральной осевой полости; топливный сердечник прочно сцеплен с оболочкой топливной секции, а топливные секции, в свою очередь, прочно соединены между собой и с основной несущей оболочкой через пластичный подслои.

Тепловыделяющие элементы исследованной опытной сборки представляли собой стержни круглого сечения диаметром $13,6 \pm 0,1$ мм, длиной 1059 ± 1 мм. В качестве несущей оболочки использовали трубу из сплава Э110 $\varnothing 13,6 \times 0,6$ мм. Активная зона тепловыделяющих элементов имела длину 660 мм и состояла из герметичных топливных секций длиной 44 мм. Каждая топливная секция представляла собой топливный стержень

Ø 11,7±0,1 мм, покрытый по наружной поверхности оболочкой из циркониевого сплава Э110 толщиной 0,2...0,3 мм, а по торцам – толщиной 2 мм.

Состав и характеристика топливных секций исследованных ТВЭЛов приведены в табл. 1.

Топливные секции соединены между собой и с наружной оболочкой через слой силумина толщиной 0,1...0,2 мм. Несущая оболочка с обеих сторон закрыта концевыми элементами, изготовленными из сплава Э110 и приваренными кольцевым швом по стыку торца оболочки и буртика концевых элементов электронно-лучевой сваркой.

Активная зона ТВЭЛа №1 тепловыделяющей сборки состояла из топливных секций со сплавом U+1,6 % мас Zr+0,2 % мас Nb (15 шт). Активная зона ТВЭЛов № 2 и № 3 была набрана из топливных секций, включающих сплавы U+3,6 % мас Zr+1,3 % мас Nb и U+5,0 % мас Zr+4,8 % мас Nb. Причем основной объем активной зоны этих ТВЭЛов состоял из топливных секций, изготовленных из сплава U+3,6 % мас Zr+1,3 % мас Nb (по 12 шт), а топливные секции из сплава U+5,0 % мас Zr+4,8 % мас Nb использовались в качестве “реперных точек”, как топливные секции, имеющие малый объем свободной полости (~6,5%) для компенсации распухания.

2. ПАРАМЕТРЫ РЕАКТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ И ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ МЕТОДИКИ

Тепловыделяющая сборка, включающая тепловыделяющие элементы описанной конструкции, была испытана в реакторе Первой АЭС (г.Обнинск).

Длительность испытаний составляла 1530 календарных суток (778 эффективных суток).

За период работы в реакторе ТВЭЛы подвергались термоциклированию и испытали 28 циклов в интервале температур 233...282°C и 22 цикла в интервале температур 233...40°C. Скорость нагрева при термоциклировании составляла $3,3 \times 10^{-2}$ °C/с, а охлаждения – $0,2 \times 10^{-2}$ °C/с. Параметры реакторных испытаний ТВЭЛов приведены в табл.2.

В процессе лабораторных исследований до постановки ТВЭЛов на реакторные испытания использовали металлографические исследования, химический и микрорентгеноспектральный анализы, механические испытания, гидростатическое взвешивание.

Таблица 1

Характеристика топливных секций тепловыделяющих элементов

Номер сплава урана	Содержание легирующих элементов в урановом сплаве в % мас						Отношение объема полости к объему топлива, %	Диаметр центрального отверстия в топливном сердечнике, мм	Плотность сплава урана, г/см ³
	Zr	Nb	Fe	Ni	Si	Be			
1	1,6	0,2	0,043	0,002	0,004	0,01	24	5,2	18,1
2	3,6	1,3	0,043	0,002	0,004	0,01	10	3,5	17,3
3	5,0	4,8	0,043	0,002	0,004	0,01	6,5	Пористость рас- пределена по объему отливки	16,2*

* Приведено расчетное значение плотности сплава урана (сплав №3).

Таблица 2

Параметры испытаний ТВЭЛов в реакторе Первой АЭС (г. Обнинск)

№ п/п	Параметры испытаний	Размерность	Значение
1	Средний тепловой поток через твэл	МВт/м ²	0,68
2	Коэффициент неравномерности тепловыделения по высоте		1,2
3	Давление теплоносителя	МПа	10
4	Температура теплоносителя на входе в сборку	°C	233
5	Температура теплоносителя на выходе из сборки	°C	282
6	Максимальная температура поверхности твэла	°C	317
7	Максимальная расчетная температура в центре твэла	°C	450
8	Поток тепловых нейтронов на номинальной мощности	Нейтр/м ² с	$1,16 \times 10^{17}$
9	Поток быстрых нейтронов	Нейтр/м ² с	$0,9 \times 10^{17}$
10	Средняя линейная тепловая мощность	кВт/м	29
11	Среднее значение плотности энерговыделения в топливе	кВт/кг	21,6
12	Среднее выгорание топлива за период испытаний	МВт сутки/кг	22

Геометрические размеры тепловыделяющих элементов определяли мерительным инструментом, а именно: диаметр – микрометром через угол 120° по длине ТВЭЛа; длину топливных таблеток – штангенциркулем, длину ТВЭЛа – рулеткой.

После завершения реакторных испытаний и выдержки в бассейне ТВЭЛы в составе канала транспортировали в горячие камеры, извлекали из канала и ТВС и готовили к проведению исследований.

В программу послереакторных исследований входили: внешний осмотр, измерение геометрических размеров на дистанционном профилометре с поворотом на угол 45° вокруг продольной оси, гамма-сканирование для определения размеров активной зоны ТВЭЛов, изготовление шлифов и их металлографические исследования.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Внешний осмотр тепловыделяющих элементов в горячих камерах показал, что несущая оболочка и сварные швы остались герметичными; поверхность ТВЭЛов была покрыта темной окисной пленкой; язв, трещин, участков белых окислов не наблюдалось ни на поверхности оболочек ТВЭЛов, ни на сварных швах. Измерение и сравнение значений диаметра ТВЭЛов, полученных в исходном состоянии и после реакторных испытаний свидетельствовало о том, что разброс значений диаметра для каждого из трех ТВЭЛов не превышал 0,2 %. Причем не наблюдалось отличия в поведении ТВЭЛов, включающих топливные секции с различной величиной компенсационного объема.

В результате измерения длины активных зон ТВЭЛов методом гамма-сканирования не было обнаружено изменений их геометрических размеров, превышающих ошибку измерений.

Металлографические исследования сварных швов тепловыделяющих элементов, выполненных электронно-лучевой сваркой, и сварных швов топливных секций, полученных контактной стыковой сваркой сопротивлением, показали, что разрушения, трещины и другие дефекты отсутствуют.

Изменений в структуре материала сварных швов, и оболочке топливных секций, которая подвергалась в процессе изготовления нагреву до $1250...1300^\circ\text{C}$ при центробежном литье топливных материалов также не произошло. Структура представляла собой α' -фазу Zr, являлась крупнозернистой, с величиной зерен в сварных швах тепловыделяющих элементов $300...400$ мкм, а на оболочке топливных секций – $50...200$ мкм (рис.1). Внутри зерен наблюдались выделения в виде игл и пластин.

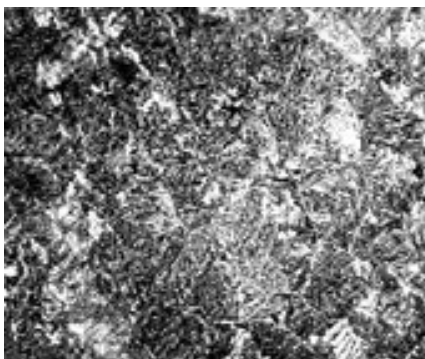


Рис.1. Структура оболочки топливной секции ТВЭЛа после реакторных испытаний, ув. 200

В результате изучения границ раздела топливо – сплав Э110 и сплав Э110 – силуминовый слой было установлено следующее. После реакторных испыта-

ний сохранился плотный контакт между топливными стержнями и оболочками ТВЭЛов. Причем прочность сцепления топлива с несущей оболочкой была удовлетворительной, о чем свидетельствовали сохранение целостности образцов при порезке вдоль оси ТВЭЛов на четыре части и результаты металлографических исследований на этих образцах границы раздела: урановое топливо – оболочка топливной секции – силуминовый слой – несущая оболочка (рис.2).

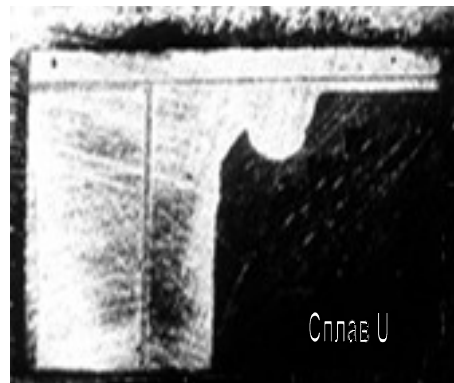


Рис.2. Участок ТВЭЛа в районе крайней топливной секции, контактирующей с циркониевым наполнителем (стержнем), ув. 6.

На границе раздела циркониевой оболочки со сплавами урана образования новых промежуточных слоев не было обнаружено.

Результаты микрорентгеноспектрального анализа границы раздела топливных материалов с циркониевой оболочкой, выполненного на образцах до проведения реакторных испытаний, свидетельствовали об образовании на границе раздела твердого раствора урана в цирконии. Характерное распределение U и Zr на границе раздела приведено на рис. 3.

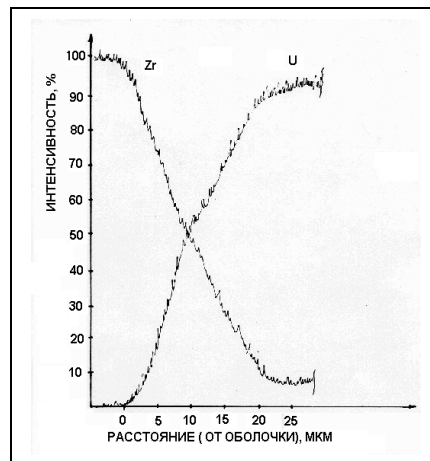


Рис.3. Кривые распределения Zr и U на границе раздела топлива ($U+3,6\% \text{ мас Zr}+1,3\% \text{ мас Nb}$) с оболочкой топливной секции (сплав Э110)

На основной части поверхности раздела силуминового слоя с оболочками из сплава Э110 наблюдалась прослойка шириной $3...6$ мкм. В отдельных ло-

кальных местах ширина этой прослойки достигала 40 мкм.

Аналогичная прослойка наблюдалась в ТВЭЛах до реакторных испытаний. Исследования прослойки с использованием микрорентгеноспектрального и металлографического анализов позволили установить, что основными элементами, входящими в ее состав, являлись Zr и Si. Содержание Zr составляло 76 ± 2 % мас, а Si – 24 ± 2 % мас. Значения микротвердости находились в пределах значений 8,5... 11,7 ГПа. Согласно данным характеристикам, вероятнее всего, прослойка представляла собой интерметаллид ZrSi [6].

После реакторных испытаний наблюдалось изменение структуры силуминового слоя. Произошло уменьшение размера частиц, представляющих собой, по результатам микрорентгеноспектрального и металлографического анализов, раствор Si в Al (рис.4).

Измерение диаметров центральных отверстий в топливных секциях после реакторных испытаний и сравнение полученных результатов с исходными значениями свидетельствовало об уменьшении размеров центральной полости. Так, если в топливных секциях со сплавом U+3,6 % мас Zr+1,3 % мас Nb в исходном состоянии диаметр центрального отверстия составлял в среднем 3,5 мм, то после облучения в реакторе наблюдалось его уменьшение до 1,9 мм (рис.5), что в пересчете на объемные изменения составляет 3,4 %.

При исследовании структуры топливных материалов в области центрального отверстия, куда в процессе центробежного литья при изготовлении топливных секций были вынесены карбиды циркония, наблюдалось залечивание трещин, образовавшихся в этой зоне в процессе их изготовления при охлаждении сплавов урана из-за различных коэффициентов линейного расширения материалов.

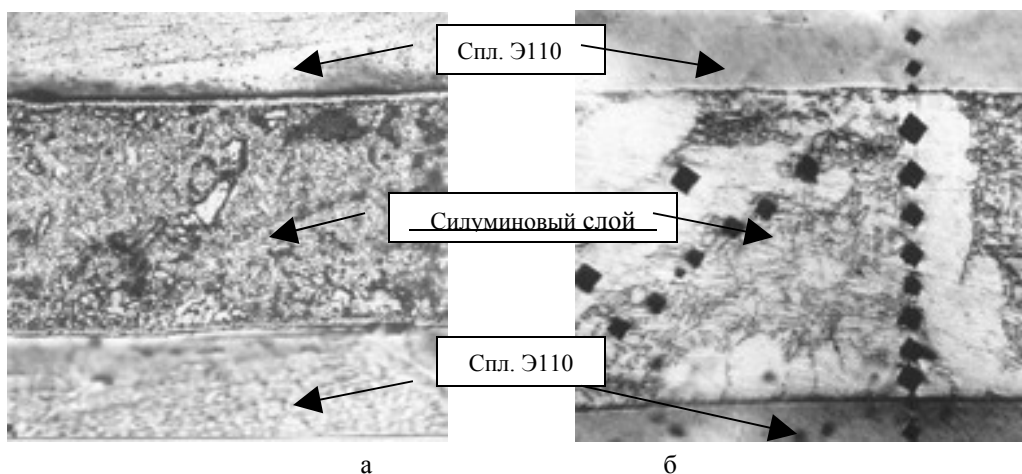


Рис.4. Граница раздела силуминового слоя с оболочками топливной секции и ТВЭЛа: а – после облучения в реакторе, ув. 200; б – исходное состояние, ув. 200

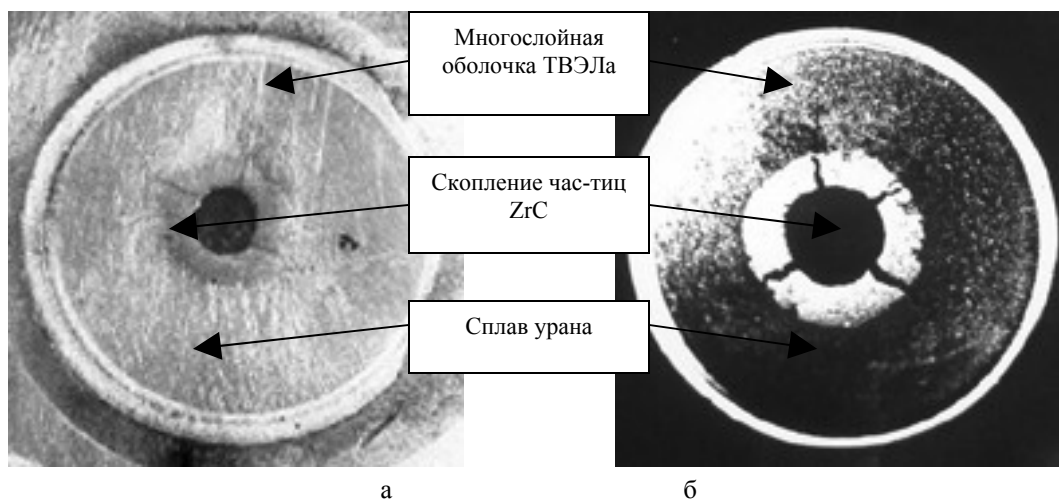


Рис. 5 – Поперечное сечение топливной секции твэла со сплавом U+3,6 % мас Zr+1,3 % мас Nb: а - после облучения в реакторе, ув. 4; б – исходное состояние, ув. 4.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Согласно модели, представленной в работе [7], которая построена по результатам облучения

ТВЭЛов сцепленного варианта, изготовленных совместным выдавливанием урана корректированного состава (U+0,036% Fe+0,1% Al+0,003% Si+0,09% C)

в оболочке из циркалоя-2, процесс объемных изменений в ТВЭЛах должен идти следующим образом.

В начальный момент облучения, когда внутренняя полость заполняется распухающим топливом, происходит уменьшение объема ТВЭЛа примерно на 1 %.

Затем после заполнения свободного пространства горючим, распухающим в результате образования продуктов деления и их внедрения в окружающую матрицу, объем ТВЭЛа увеличивается со скоростью не ниже, чем 3 % об на 1 % ат выгорания (теоретическое минимальное значение). Причем при объеме внутренней полости 5 % восстановление объема ТВЭЛа до исходного по данным работы [7] наблюдалось при выгораниях 10...15 МВт сут/кг. Согласно данной модели в нашем случае послереакторных испытаний до выгорания 22 МВт сут/кг должно наблюдаться уменьшение диаметра ТВЭЛа № 1 и ТВЭЛов № 2 и № 3 на участках с топливными секциями, содержащими сплав U+3,6 % мас Zr+1,3 % мас Nb. На участках этих ТВЭЛов, в районе расположения топливных секций со сплавом U+5,0 % мас Zr+4,8 % мас Nb, размеры ТВЭЛов должны несколько превышать исходные.

Тем не менее, полученные результаты свидетельствуют об отсутствии изменений геометрических размеров ТВЭЛов в указанных диапазонах, что, вероятнее всего, обусловлено более низкой скоростью распухания используемых сплавов урана по сравнению с ураном корректированного состава и наличием промежуточного мягкого силуминового слоя, амортизирующего объемные изменения.

Высокая коррозионная стойкость циркониевой оболочки ТВЭЛов, отсутствие значительных зон диффузионного взаимодействия на границе раздела силуминового слоя с циркониевыми оболочками как в процессе изготовления ТВЭЛов, так и в результате работы в реакторе, подтверждает тот факт, что использование силуминового слоя в данной конструкции тепловыделяющих элементов является перспективным, а операция заполнения зазора в ТВЭЛах его расплавом выполнена на оптимальных режимах. Причем наличие интерметаллидного слоя ZrSi на границе раздела контактирующих материалов не приводит к нарушению сцепления топливных секций с основной оболочкой ТВЭЛа в процессе работы в реакторе.

ВЫВОДЫ

1. На тепловыделяющей сборке, состоящей из тепловыделяющих элементов сцепленного типа с металлическим топливом, представляющим собой сплавы урана с Zr и Nb, достигнуто среднее выгора-

ние 22 МВт сут/ кг U при температуре водного теплоносителя 282 °С и плотности энерговыделения 21,6 кВт/кг.

2. В результате проведения послереакторных исследований установлено отсутствие изменения геометрических размеров ТВЭЛов и изменения структуры сварных швов на оболочках из сплава Э110, сохранение прочного сцепления топливных сердечников с оболочками ТВЭЛов, уменьшение центрального отверстия топливных стержней, служащего компенсационной полостью.

3. Распухание сплавов урана в тепловыделяющих элементах данной конструкции направлено внутрь топливных стержней, полностью компенсируется центральной осевой полостью и составляет не более 3,4 % об на 1 % ат выгорания.

4. Полученные результаты свидетельствуют о достаточно высокой надежности предложенной конструкции и технологии изготовления сцепленного варианта ТВЭЛов в многослойной оболочке с металлическим топливом и возможности достижения более глубоких выгораний.

Авторы выражают благодарность сотрудникам НИЦ ХФТИ Н.А.Семенову и Н.И.Рагулиной, а также коллективу сотрудников ФЭИ (г.Обнинск) за помощь в проведении материаловедческих исследований и за обсуждение результатов исследований.

ЛИТЕРАТУРА

1. А.П.Сироткин. Повышение эффективности использования топлива в LWR // *Атомная техника за рубежом*. 1984, №3, с.3–13.
2. А.Д.Жирнов, А.П.Сироткин, С.В.Брюнин и др. К вопросу об использовании металлического урана в энергетических канальных уран-графитовых реакторах // *Атомная энергия*. 1973, т.34, вып.6, с.479–481.
3. А.П.Александров, Н.А.Долежал. Развитие уран-графитовых канальных реакторов в СССР. // *Атомная энергия*. 1977, т.43, вып.5, с.337–343.
4. В.С.Красноруцкий, В.Р.Татаринов. Разработка ТВЭЛов с топливом на основе металлического урана для энергетических реакторов // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 1999, вып.1 (73)-2 (74), с.87–94.
5. Н.Н.Белаш, В.С.Красноруцкий, В.Р.Татаринов. А.С. № 245514 от 09.01.84, МКИ G 21 C 3/00.
6. Т.В.Самсонов, И.М.Винницкий. Тугоплавкие соединения. /Справочник. М.: «Металлургия», 1976.
7. G.Zorzoli. Future potential of metallic fuels for water reactors // *Journal of the British Nuclear Energy Society*, 1974, v.13, N1, p.63–68.