

На правах рукописи

Митюрёв Кирилл Владимирович

**МЕХАНИЗМЫ ПОВРЕЖДЕНИЯ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ ЯДЕРНЫХ
РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ ПРИ ВЫСОКОДОЗНОМ
НЕЙТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ**

01.04.07 – «Физика конденсированного состояния»

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

Автор:



Москва – 2012

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете
Московский инженерно-физический институт

НАУЧНЫЙ РУКОВОДИТЕЛЬ: доктор физико-математических наук,
профессор Коновалов И.И.,
НИЯУ МИФИ

ОФИЦИАЛЬНЫЕ ОПОНЕНТЫ: Неустроев Виктор Степанович,
доктор технических наук, профессор,
ОАО «ГНЦ НИИАР»,
г. Димитровград

Малыгин Василий Борисович,
доктор технических наук, профессор,
НИЯУ МИФИ, г. Москва

ВЕДУЩАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ: ФГУП ГНЦ РФ-ФЭИ
имени А.И. Лейпунского,
г.Обнинск.

Защита состоится «16» января 2013 г. в 16 час. 30 мин.

на заседании диссертационного совета Д 212.130.04 НИЯУ МИФИ

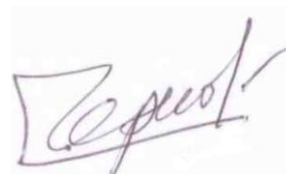
по адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, 31.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ.

Автореферат разослан «14» декабря 2012 г.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в одном
экземпляре, заверенном печатью организации, по адресу НИЯУ МИФИ.

Ученый секретарь диссертационного совета,
д.ф.-м.н., профессор



И.И. Чернов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы. В качестве составной части среднесрочного сценария национальной атомной энергетики принято направление развития энергоблоков с реакторами на быстрых нейтронах (БР). Оно реализуется в строящемся реакторе БН-800 и в проектных работах по созданию БР нового поколения, рассчитанных на промышленное применение. Экономическая целесообразность эксплуатации реакторов на быстрых нейтронах предусматривает увеличение коэффициента использования установленной мощности (КИУМ) реактора и использование смешанного топлива.

Эксплуатация БР современной концепции должна проводиться при условии обеспечения требуемого уровня безопасности. Поскольку безопасность эксплуатации твэлов БР промышленного типа обеспечивается целостностью оболочки, основной характеристикой является величина повреждающей дозы, приходящейся на оболочку твэла.

Экспериментальное определение предельной повреждающей дозы оболочек твэлов, то есть, облучение полномасштабных твэлов до их разрушения в реальной конструкции тепловыделяющей сборки (ТВС), практически невозможно. Однако, возможно определения служебных свойств с помощью послеэксплуатационного исследования оболочек твэлов. Основными характеристиками состояния твэла, определяемыми при послеэксплуатационном анализе, являются его геометрическая устойчивость и механическая прочность оболочки. Опираясь на эти свойства, можно установить начало необратимого процесса деградации свойств оболочки и обосновать остаточный ресурс. В настоящее время послеэксплуатационный анализ состояния топливных стержней проводится как в «горячей камере» реактора БН-600, так и в «горячих камерах» Института реакторных материалов (ООО «ИРМ»).

Как установлено американскими и отечественными исследователями, деградация предела кратковременной прочности и относительного остаточного удлинения практически до нуля наблюдается в области значений распухания 10–12 %. В настоящее время безаварийная эксплуатация твэлов в БН-600 проводится до распухания 15 %. Таким образом, критерий остаточного ресурса, основанный только на данных предела кратковременной прочности облученных оболочек твэлов, оказывается заниженным по сравнению с данными эксплуатации сборок. Необходимо предложить новую характеристику определения остаточного ресурса твэла при высоких повреждающих дозах, не связанную с пределом прочности.

Для определения предельной повреждающей дозы материала оболочки твэла используются материаловедческие образцы – полые трубки, вырезанные из штатных оболочек твэлов и заполненные инертным газом. Сравнение служебных свойств и структуры оболочек твэлов и материаловедческих образцов дают возможность установить, какие факторы снижают ресурс твэла.

Диссертация посвящена возможности прогнозирования поведения служебных свойств штатных оболочек твэлов при эксплуатации в БР до высоких повреждающих доз. Предлагается проводить оценку остаточного ресурса штатного твэла, основываясь на результатах послеэксплуатационного исследования служебных характеристик их оболочек и, используя результаты облучения материаловедческих образцов. Поэтому тема диссертации актуальна.

Цель работы. Целью работы явилось выявление закономерности поведения оболочек твэлов реактора БН-600 при высокодозном нейтронном облучении, а также, разработка модели развития повреждений в материале и определение критерия остаточного ресурса твэла.

Для достижения цели требовалось решить следующие задачи:

- Выявить факторы повреждаемости материалов оболочек твэлов, приводящие к потере служебных свойств и геометрической стабильности оболочки.
- Определить набор методик послезаказного контроля, необходимых для оценки работоспособности оболочек твэлов на высоких повреждающих дозах.
- Выявить закономерности поведения измеряемых параметров твэла, характеризующих его работоспособность, при достижении высоких повреждающих доз.
- Получить формулу, описывающую поведение измеряемых параметров работоспособности оболочки твэла перед разрушением при облучении до высоких повреждающих доз.
- Выявить основные факторы, ускоряющие накопление повреждений оболочки твэла в условиях механического взаимодействия пучка твэлов с чехлом ТВС при высоких повреждающих дозах.
- Определить возможность оценки остаточного ресурса твэла методом расчета формоизменения и прочности, используя программный код PINCOD, на высоких повреждающих дозах.

Научная новизна работы.

1. Впервые показана связь «эффективной жесткости» кристаллической решетки с микроструктурой материала.
2. Получена формула, описывающая остаточный ресурс твэла по характеру деградации значений «эффективной жесткости» кристаллической решетки.
3. Впервые показано, что ускоренное накопление повреждений в оболочках твэлов в условиях механического взаимодействия пучка твэлов с чехлом ТВС происходит в областях овализации.
4. Проведена оценка остаточного ресурса твэла, облученного до сверхштатных повреждающих доз, с помощью программного кода, используемого для обоснования работоспособности штатных твэлов реакторов на быстрых нейтронах.

Практическая значимость работы.

В диссертации разработана модель развития разрушения оболочки твэлов реактора БН-600 на высоких повреждающих дозах. Данная модель применима к анализу разрушения всех аустенитных сталей, используемых в качестве оболочек твэлов в реакторных установках типа БР. Рассматриваемый в диссертации процесс накопления повреждений, связанный с взаимодействием твэлов друг с другом через дистанционирующую проволоку, имеет универсальный характер для твэлов с оболочками из разных видов сталей. Результаты диссертации могут быть использованы для обоснования применения стали ЧС-68 х.д. в качестве оболочек твэлов реактора БН-800 и реакторов нового поколения.

Основные положения, выносимые на защиту.

1. Закономерность деградации служебных характеристик оболочек твэлов, прошедших облучение до сверхштатных повреждающих доз ~ 90 сна.

2. Формула, описывающая поведение служебных параметров оболочки твэла перед разрушением при облучении до высоких повреждающих доз.
3. Результаты анализа процессов накопления повреждений в оболочках твэлов в условиях механического взаимодействия пучка твэлов с чехлом ТВС.
4. Результаты анализа работоспособности оболочки твэла на высоких повреждающих дозах в условиях взаимодействия пучка твэлов с чехлом ТВС.

Личный вклад соискателя

Соискатель принимал непосредственное участие:

- в обсуждении и постановке задачи по разработке нового параметра и критерия оценки работоспособности материала оболочки твэла;
- в получении экспериментальных данных с использованием различных методик на облученных твэлах в «горячих» камерах БН-600, ОАО «ИРМ», разработке алгоритмов расчета, анализе экспериментальных и расчетных данных;
- в анализе исходных данных и полученных результатов при расчете работоспособности твэлов, прошедших облучение до высоких повреждающих доз.

Объем и структура работы

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и библиографии, изложена на 120 страницах, содержит 51 рисунок, 27 таблиц и список цитируемой литературы из 90 наименований.

Апробация работы

Основные положения работы представлены и обсуждены на следующих научных семинарах, совещаниях и конференциях: научные сессии МИФИ-2007 (Москва, 2007 г.); НИЯУ МИФИ-2009 (Москва, 2009 г.), НИЯУ МИФИ-2010 (Москва, 2010 г.); НИЯУ МИФИ-2011 (Москва, 2011 г.); Международная конференция «Материалы ядерной техники» МАЯТ-2006 (г. Агой, 2006 г.); Отраслевой семинар «Физика радиационных повреждений материалов атомной техники» (г. Обнинск, ФЭИ, 2007, 2009, 2010 гг.); XXI Международная конференция «Радиационная физика твердого тела» (г. Севастополь, 2011 г.).

Публикации.

По теме диссертации опубликовано 10 работ в научных трудах и сборниках трудов Международных и Российских конференций, совещаний и семинаров, в том числе 4 статьи в рецензируемых журналах.

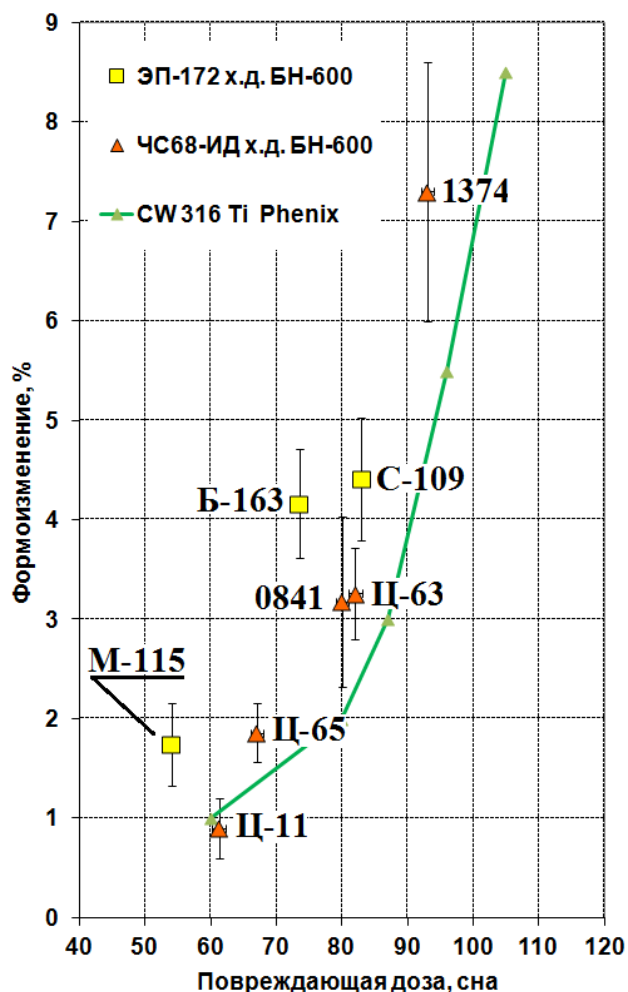
ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность проблемы, сформулированы цель и задачи работы, отражены научная новизна полученных результатов и их практическая ценность, приведены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе проведен анализ литературных данных по изменению механических свойств различных материалов оболочек твэлов опытно-промышленных реакторов на быстрых нейтронах и геометрических размеров этих оболочек при повреждающих дозах 80 сна и более.

На рис. 1 приведена зависимость формоизменения штатных твэлов реактора БН-600 и штатных твэлов французского реактора Phenix от повреждающей дозы. Сравниваются значения формоизменения оболочек из сталей ЧС-68 х.д., ЭП-172 х.д. и их французского аналога – стали CW 316 Ti.

Рис. 1. Зависимость формоизменения оболочек штатных твэлов реактора Phenix из стали CW 316 Ti и оболочек штатных твэлов реактора БН-600 из сталей ЧС-68 х.д. и ЭП-172 х.д. от величины повреждающей дозы.



Из рис. 1 видно, что в области высоких повреждающих доз (~ 80 – 90 сн) незначительное накопление повреждающей дозы приводит к значительному формоизменению. Такое поведение наблюдается как у отечественных типов сталей ЭП-172 х.д. и ЧС-68 х.д., так и у зарубежного аналога стали CW 316 Ti. Причина схожего поведения заключается в очень близком химическом составе этих сталей, который приведен в табл. 1.

Табл. 1

Химический состав сталей ЭП-172, ЧС-68 и 316 Ti, масс. %

Сталь	C	Cr	Ni	Mn	Mo	Nb	Ti	Si	P+B+S
ЭП-172	0,05 – 0,09	15,5 – 16,5	14,0 – 16,0	0,5 – 0,9	2,7 – 3,2	0,1 – 0,4	< 0,05	0,3 – 0,6	0,011 – 0,03
ЧС-68	0,05 – 0,08	15,5 – 17,0	14,0 – 15,5	1,3 – 2,0	1,9 – 2,5	–	0,2 – 0,5	0,3 – 0,6	< 0,05
316 Ti	0,05	15,0 – 17,0	14,0 – 15,0	< 1,7	1,2 – 2,8	< 0,1	0,1 – 0,4	0,4 – 0,7	< 0,02

В табл. 2 указаны режимы эксплуатации (повреждающая доза и выгорание) штатных ТВС, прошедших облучение в реакторе БН-600. Усредненные значения формоизменения твэлов указанных ТВС представлены на рис. 1.

Табл. 2

Параметры эксплуатации экспериментальных ТВС

ТВС	Сталь оболочки	Активная зона	Повреждающая доза, сна	Выгорание, % т.а.
Ц-11	ЧС-68 х.д.	01 ЗМО	56	7,4
Ц-65	ЧС-68 х.д.	01 ЗМО	71	9,1
Ц-63	ЧС-68 х.д.	01 ЗМО	87	11,5
0841	ЧС-68 х.д.	01М ЗСО	87	11,1
1374	ЧС-68 х.д.	01М ЗМО	93	11
М-115	ЭП-172 х.д.	01М ЗМО	61	7,8
С-109	ЭП-172 х.д.	01М ЗСО	82	10,2
Б-163	ЭП-172 х.д.	01М ЗБО	76	11,7

Из табл. 2 видно, что глубина выгорания топлива ТВС Б-163 в зоне 01М большого обогащения (ЗБО) выше значения выгорания топлива для ТВС С-109 в зоне 01М среднего обогащения (ЗСО). Однако повреждающая доза, накопленная оболочками твэлов ТВС С-109, больше повреждающей дозы, накопленной оболочками твэлов ТВС Б-163. Поскольку формоизменение твэлов обеих ТВС отличаются не значительно (как видно на рис. 1), то можно предположить, что повреждения материала, влияющие на формоизменение оболочек, накапливаются не только под влиянием потока нейтронов высоких энергий, но и в результате взаимодействия топлива с оболочкой.

Исследования твэлов реактора FFTF, прошедших облучение до высоких повреждающих доз, показали, что изменение формы твэла связано не только с изменением объема оболочки (распуханием), но также и с радиационной ползучестью. На рис. 2 представлена профилограмма оболочки твэла, наблюдаемая после облучения штатного твэла в реакторе FFTF до повреждающей дозы ~ 120 сна: оболочка твэла приобретает локальную овализацию.

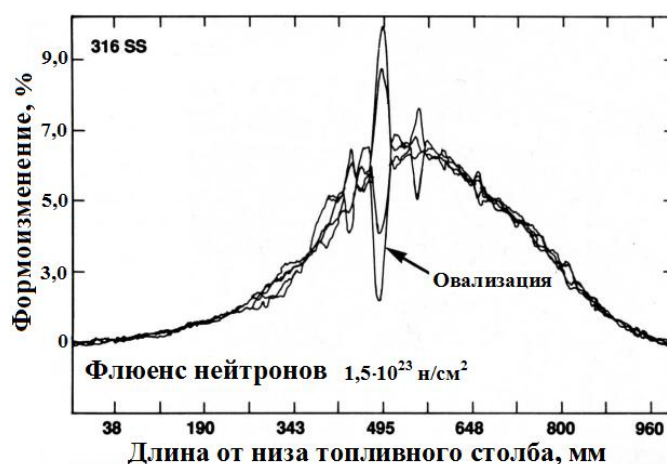


Рис. 2. Профилограмма твэла реактора FFTF. Каждая кривая изображает изменение диаметра, измеренного в четырех плоскостях продольного сечения по длине твэла

Причиной возникновения овализации является пластическая деформация оболочек, возникающая из-за механического взаимодействия твэлов друг с другом через дистанционирующую проволоку в результате ограничения деформации пучка твэлов со стороны распухающего чехла ТВС из ферритно-мартенситной стали. Такое нарушение геометрических размеров твэла является причиной изменения температурного режима их эксплуатации и, соответственно фактором накопления повреждений.

Относительное остаточное удлинение и предел кратковременной прочности характеризуют способность материала сопротивляться развитию разрушения. На рис. 3 и 4 приведены зависимости относительного остаточного удлинения и предела прочности от распухания, соответственно.

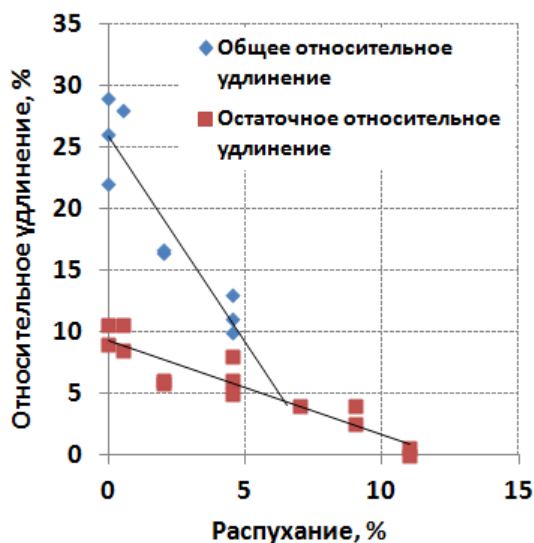


Рис. 3. Зависимость относительного остаточного удлинения образцов чехла ТВС из стали CW 316 Ti реактора Phenix от распухания при температуре облучения 500 ± 10 °С.

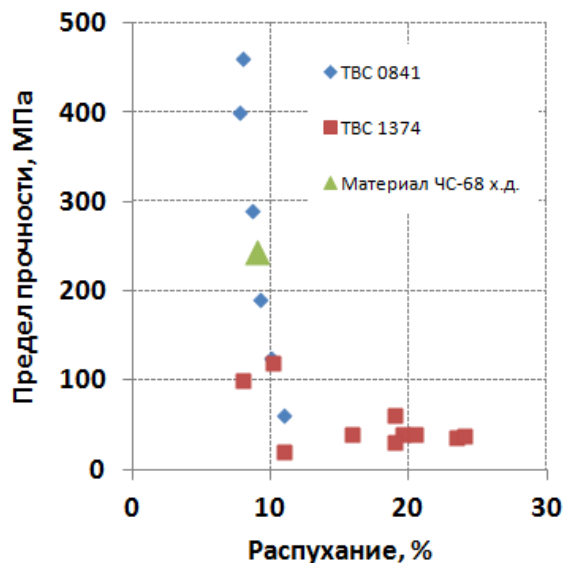


Рис. 4. Зависимость предела прочности образцов оболочек твэлов реактора БН-600 из стали ЧС-68 х.д., облученных при температуре $450-500$ °С от распухания. Треугольным маркером показан предел прочности материаловедческого образца, облученного до 108,7 сна.

На рис. 3 видно, что в области распухания $\sim 10-12$ % относительное остаточное удлинение равно нулю. Согласно рис. 4 предел кратковременной прочности в той же области распухания $\sim 10-12$ % достигает среднего по сборке значения ~ 50 МПа и практически не меняется с увеличением распухания. На рис. 4 показано значение предела кратковременной прочности материаловедческого образца, облученного до 108,7 сна, и образцов оболочек твэлов, облученных до 87 сна. Видно, что пределы прочности материаловедческого образца и образца оболочки твэла близки.

Сравнение структур образцов оболочек твэлов и материаловедческого образца показало, что причина деградации прочности образцов оболочек твэлов связана с наличием микротрещин, которые отсутствуют на внутренней поверхности материаловедческого образца. Фотография металлографического шлифа с явно различимыми микротрещинами приведена на рис. 5. Поскольку оболочка твэла в ТВС находится в напряженном состоянии, то одной из причин возникновения микротрещин является коррозионное растрескивание оболочки под напряжением в среде коррозионно-активных продуктов деления.

Несмотря на риск развития трещин в оболочке, в активной зоне реактора БН-600 накоплен богатый опыт эксплуатации герметичных твэлов до значений распухания, превышающих 12 %. Такой опыт является основой обоснования эксплуатации твэлов в реакторе БН-800.

Таким образом, потеря геометрической стабильности оболочек твэлов определяется не только распуханием, но также глубиной выгорания топлива и взаимодействием твэлов друг с другом через дистанционирующую проволоку вследствие ограничения деформации пучка твэлов со стороны не распухающего чехла ТВС. Потеря пластичности и прочности материала связана с развитием коррозионного растрескивания внутренней поверхности оболочки под напряжением.

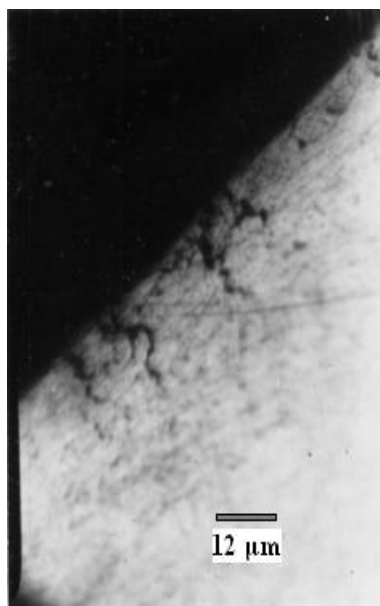


Рис. 5. Фотография внутренней поверхности образца, оболочки твэла реактора БН-600 из стали ЧС-68 х.д., облученного при температуре 450–500 °С.

Во второй главе описаны методики послереакторных исследований и параметры эксплуатации твэлов в реакторе БН-600.

Анализ распределения параметров эксплуатации (линейной мощности, выгорания, температуры и повреждающей дозы) по длине исследуемых твэлов, проведен эксплуатирующей организацией (Белоярской АЭС) с помощью программного комплекса ГЕФЕСТ. В табл. 3–5 приведены значения перечисленных параметров эксплуатации твэлов в начале и в конце топливной кампании.

Табл. 3

Параметры эксплуатации твэлов ТВС 0841

МКК*	Сумм. эф.сут	q_l ,** кВт/м	Максимальное выгорание, % т.а.	Максимальная доза, сна	Температура в центральном сечении, °С
21	0	41,6	-	0	548
24	610	31,6	11,1	86,5	509

* МКК – номер микрокампании (работа реактора между перегрузками)

** q_l – линейная тепловая мощность твэла

Табл. 4

Параметры эксплуатации твэлов ТВС 1374

МКК	Сумм. эф.сут	q_l , кВт/м	Максимальное выгорание, % т.а.	Максимальная доза, сна	Температура в центральном сечении, °С
24	0	37,3	0	0	544
27	659,5	30,2	10,9	93	500

Параметры эксплуатации твэлов ТВС Ц-63

МКК	Сумм. эф.сут	q_l , кВт/м	Максимальное выгорание, % т.а.	Максимальная доза, сна	Температура в центральном сечении, °С
15	0	45,4	-	0	539
19	538	34,1	9,5	87,5	-

Все сборки проходили облучение в ЗМО реактора БН-600 при стабильном режиме работы активной зоны. Условия их облучения идентичны, как видно из приведенных в табл. 3–5 данных. Сборки прошли эксплуатацию в штатном режиме (без разгерметизаций), также в штатном режиме прошла перегрузка их во внутриреакторное хранилище и потом в бассейн выдержки. В «горячей камере» реактора БН-600 произошла разгерметизация 27 твэлов ТВС 1374 при их извлечении из чехла.

В табл. 6 приведены методики, используемые для анализа состояния облученных материалов. Анализ герметичных твэлов проводился с использованием методик, внедренных в «горячей» камере БН-600, а анализ образцов оболочек проводился с использованием методик, внедренных в «горячей» камере ИРМ.

Табл. 6

Методики исследований облученных твэлов

Методика	Назначение, цель
Методики, внедренные в «горячей» камере БН-600	
Определение геометрических размеров оболочек твэлов (профилометрия)	<ul style="list-style-type: none"> Измерение внешнего диаметра оболочки по высоте твэла Измерение овализации оболочки на различных участках Определение профиля поперечного сечения оболочки Определение дозно-температурных зависимостей и параметров распухания
Импульсная вихретоковая дефектоскопия	<ul style="list-style-type: none"> Определение состояния оболочки (наличие и локализация дефектов, аномальных областей) Установление областей контакта топлива с оболочкой
Гамма-спектрометрические исследования	<ul style="list-style-type: none"> Определение радиоактивного нуклидного состава гамма-излучателей на различных участках твэлов Установление пространственных распределений активности радиационных продуктов деления
Методики, внедренные в «горячей» камере ИРМ	
Ультразвуковая резонансная спектроскопия	<ul style="list-style-type: none"> Измерение ультразвуковых резонансных частот продольных и поперечных колебаний в образце оболочки твэла Расчет модуля Юнга и модуля сдвига по значениям частот продольных и поперечных колебаний
Электронная микроскопия	<ul style="list-style-type: none"> Определение структурного состояния образцов оболочки твэла Установление областей микронесплошностей материала
Гидростатическое взвешивание	<ul style="list-style-type: none"> Измерение плотности образца по расчету объема им вытесненной жидкости

В «горячей камере» БН-600 измеряют геометрические размеры твэлов, определяют его герметичность, распределение продуктов деления и наличие дефектов и области локализации повреждений оболочки.

В «горячей камере» ИРМ определены механические свойства материала и установлена их взаимосвязь со структурой. Кроме методик, перечисленных в табл. 6, в «горячей камере» ИРМ проведены измерения предела кратковременной прочности и относительного удлинения.

Прочностные свойства материала зависят от значений его упругих модулей, для определения которых используется методика ультразвуковой резонансной спектроскопии. Кроме того, методика измерения упругих свойств оказывается экспрессной в отличие от измерения прочностных свойств.

Во второй главе также определен набор методик, необходимых для анализа накопления повреждений материала и геометрической стабильности оболочек твэлов.

В третьей главе проанализированы характеристики упругости материала, полученные методом ультразвуковой резонансной спектроскопии, а также фотографии микроструктуры образцов оболочек твэлов, полученные методом электронной микроскопии.

С помощью метода ультразвуковой резонансной спектроскопии непосредственно измерены резонансные частоты продольных и поперечных ультразвуковых колебаний 2-го тона. Длина волны ультразвуковых колебаний 2-го тона равна длине образца. По этим частотам были рассчитаны модуль Юнга (E) и модуль сдвига (G) исследуемого материала:

$$E = 4\rho \cdot L^2 \cdot \nu_l^2, \quad (1)$$

$$G = 4\rho \cdot L^2 \cdot \nu_\tau^2, \quad (2)$$

где ρ – плотность вещества, ν_l – резонансная частота продольных собственных колебаний, ν_τ – резонансная частота поперечных собственных колебаний, L – длина образца.

На рис. 6 и 7 приведены зависимости модуля Юнга от величины повреждающей дозы и набухания соответственно. Аналогичный характер будут иметь зависимости модуля сдвига от набухания и от повреждающей дозы.

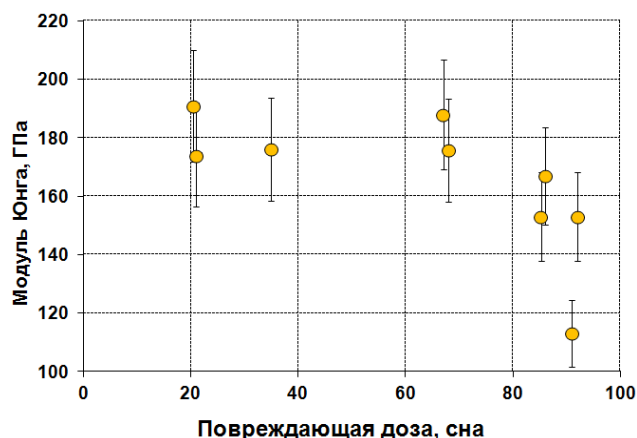


Рис. 6. Зависимость модуля Юнга от величины повреждающей дозы.

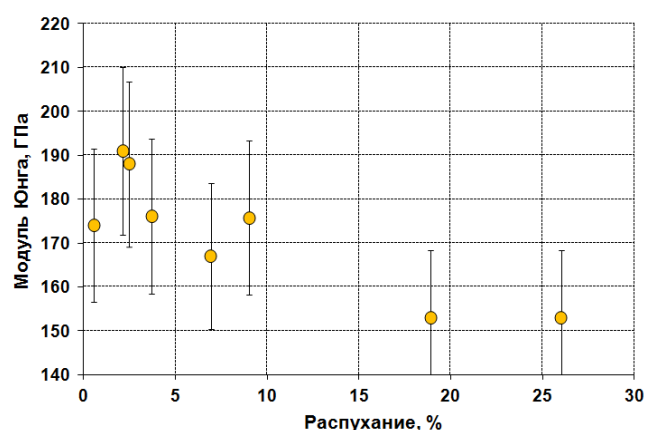


Рис. 7. Зависимость модуля Юнга от величины набухания.

На рис. 6 видно, что модуль сдвига вплоть до повреждающих доз ~ 70 – 80 сна изменяется слабо, а в области повреждающих доз ~ 80 – 90 сна происходит его резкое уменьшение. Зависимость модуля Юнга от распухания, приведенная на рис. 7, имеет характер монотонного уменьшения.

Согласно теории распространения колебаний в изотропной среде, поперечная (c_τ) и продольная (c_l) скорости звука связаны с модулями упругости соотношениями вида:

$$c_\tau^2 = \frac{G}{\rho}, \quad (3)$$

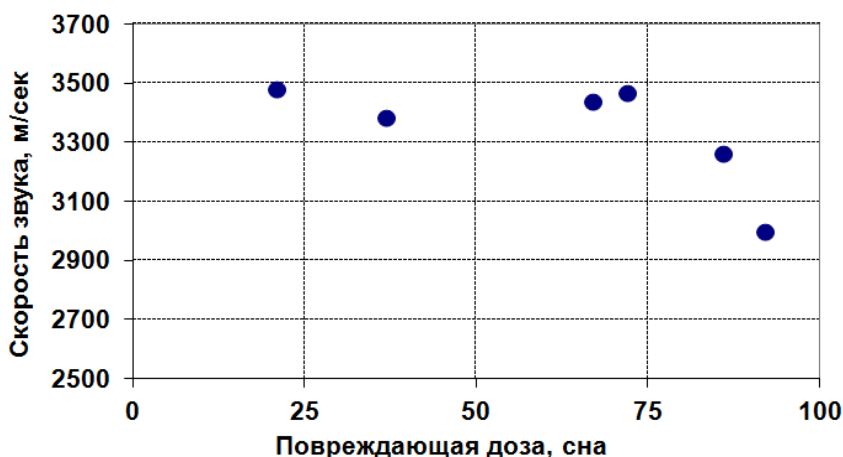
$$c_l^2 = \frac{E}{\rho} \quad (4)$$

Средняя скорость распространения ультразвуковых волн в образце оболочки твэла (c) в дебаевском приближении рассчитывалась по формуле:

$$c = \left[\frac{1}{3} \left(\frac{1}{c_l^3} + \frac{2}{c_\tau^3} \right) \right]^{-3} \quad (5)$$

На рис. 8 представлена зависимость средней скорости распространения ультразвуковых волн в образцах оболочек твэлов от величины повреждающей дозы.

Рис. 8. Зависимость средней скорости распространения ультразвуковых волн в образцах оболочек твэлов реактора БН-600 из стали ЧС-68 х.д., облученных при температуре 480 – 520 °С от величины повреждающей дозы.



На рис. 8 видно, что в области повреждающих доз ~ 75 – 90 сна происходит резкое уменьшение значений скорости ультразвуковых колебаний. Причина резкого уменьшения скорости звука связана с накоплением повреждений в структуре материала.

Определим «эффективную жесткость» кристаллической решетки для пористого материала как коэффициент пропорциональности между силой межатомного взаимодействия в гармоническом приближении и смещением атома из положения равновесия. Максимальная частота нормальных колебаний в решетке связана с «эффективной жесткостью» кристаллической решетки (H) соотношением вида:

$$\omega_m \equiv \sqrt{\frac{H}{m}}, \quad (6)$$

где ω_m – максимальная частота нормальных колебаний атомов в рамках модели Дебая, m – средняя масса атомов в материале.

Максимальная частота нормальных колебаний в дебаевском приближении имеет вид:

$$\omega_m = c \cdot (6\pi \cdot n)^{1/3}, \quad (7)$$

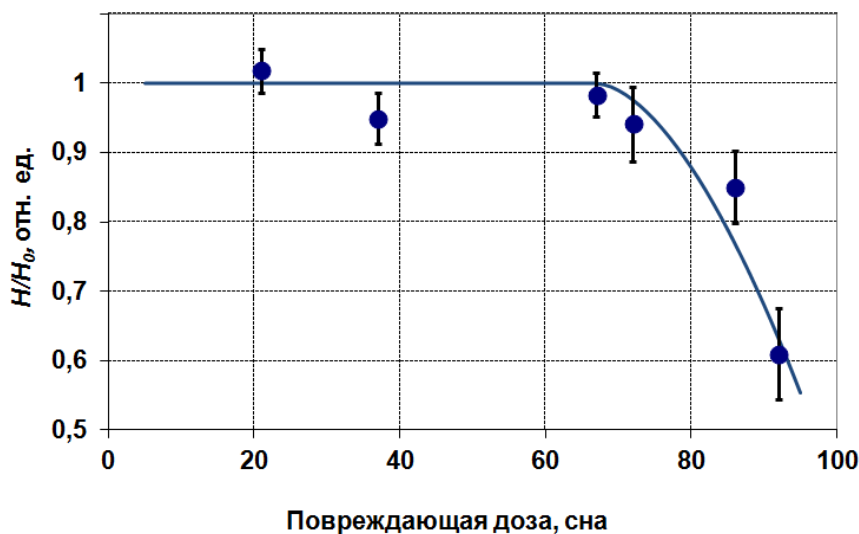
где n – атомная концентрация. Подставив соотношение (7) в выражение (6) получим выражение для расчета «эффективной жесткости» кристаллической решетки:

$$H = \left(\frac{36\pi^2}{n}\right)^{1/3} \rho \cdot c^2, \quad (8)$$

где концентрация атомов в материале является константой.

На рис. 9 изображена зависимость отношения «эффективной жесткости» кристаллической решетки облученного материала к «эффективной жесткости» кристаллической решетки необлученного образца-свидетеля (H/H_0) от повреждающей дозы.

Рис. 9. Зависимость отношения «эффективной жесткости» кристаллической решетки облученной стали ЧС-68 х.д. к «эффективной жесткости» кристаллической решетки не облученного образца-свидетеля от величины повреждающей дозы. Температура облучения 480–520 °С.



Из рис. 9 видно, что при повреждающих дозах, меньших 70 сна величина H/H_0 практически не изменяется. В области повреждающих доз ~ 70 –90 сна отношение H/H_0 претерпевает резкое уменьшение.

На рис. 10 приведены фотографии микроструктур образцов оболочек твэлов из стали ЧС-68 х.д., соответствующих различным повреждающим дозам. Для каждой микроструктуры построены гистограммы распределения пор по размерам, которые дают возможность рассчитать плотность пор и их средний диаметр. Анализ гистограмм показывает, что с ростом повреждающей дозы объемная доля пор (пористость) увеличивается за счет увеличения размера пор.

На фотографиях микроструктур (см. рис. 10) видны сформировавшиеся цепочки вакансионных пор. Распределение пор по размерам показывает, что объемная доля пор, при которой наблюдаются цепочки в структуре материала, составляет 17 %. Формирование таких цепочек имеет случайный характер.

На рис. 11 приведена корреляция отношения H/H_0 и состояния микроструктуры образцов оболочек твэлов, соответствующих разным повреждающим дозам.

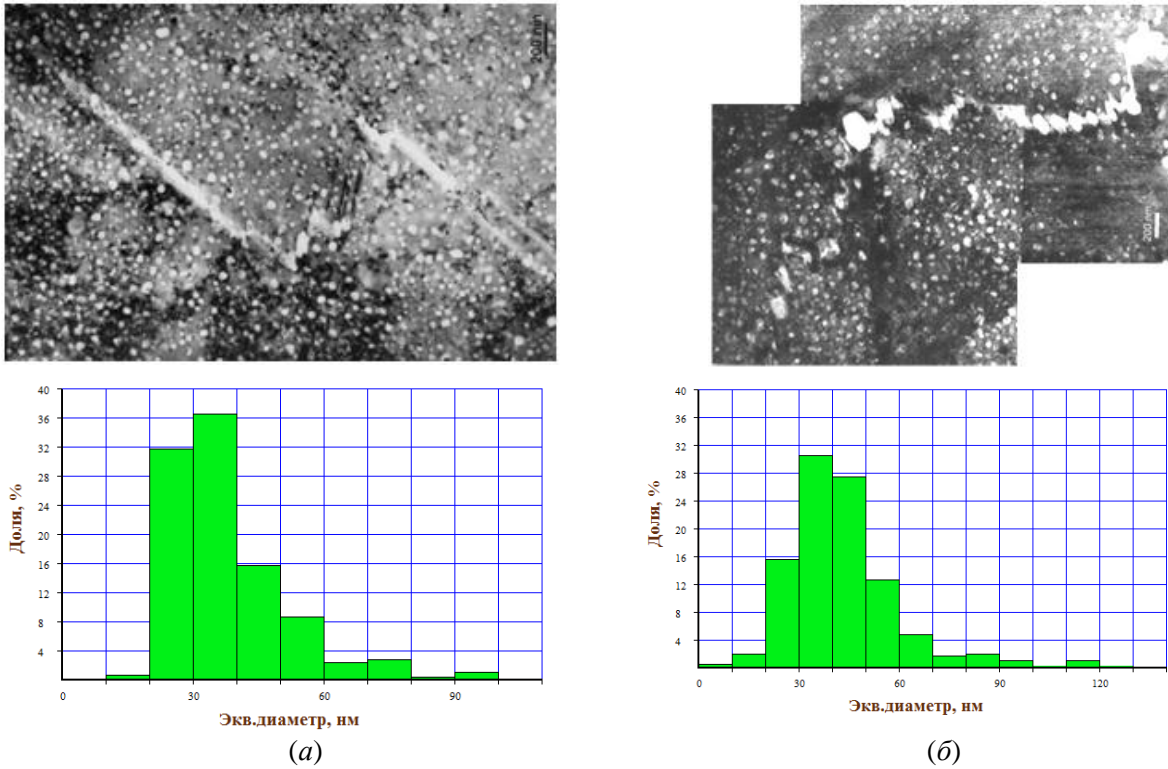


Рис. 10. Фотографии микроструктур образцов оболочек твэлов, облученных до повреждающих доз $D = 67$ сна (а); $D = 72$ сна (б) и гистограммы распределения вакансионных пор, изображенных на этих фотографиях, по размерам.

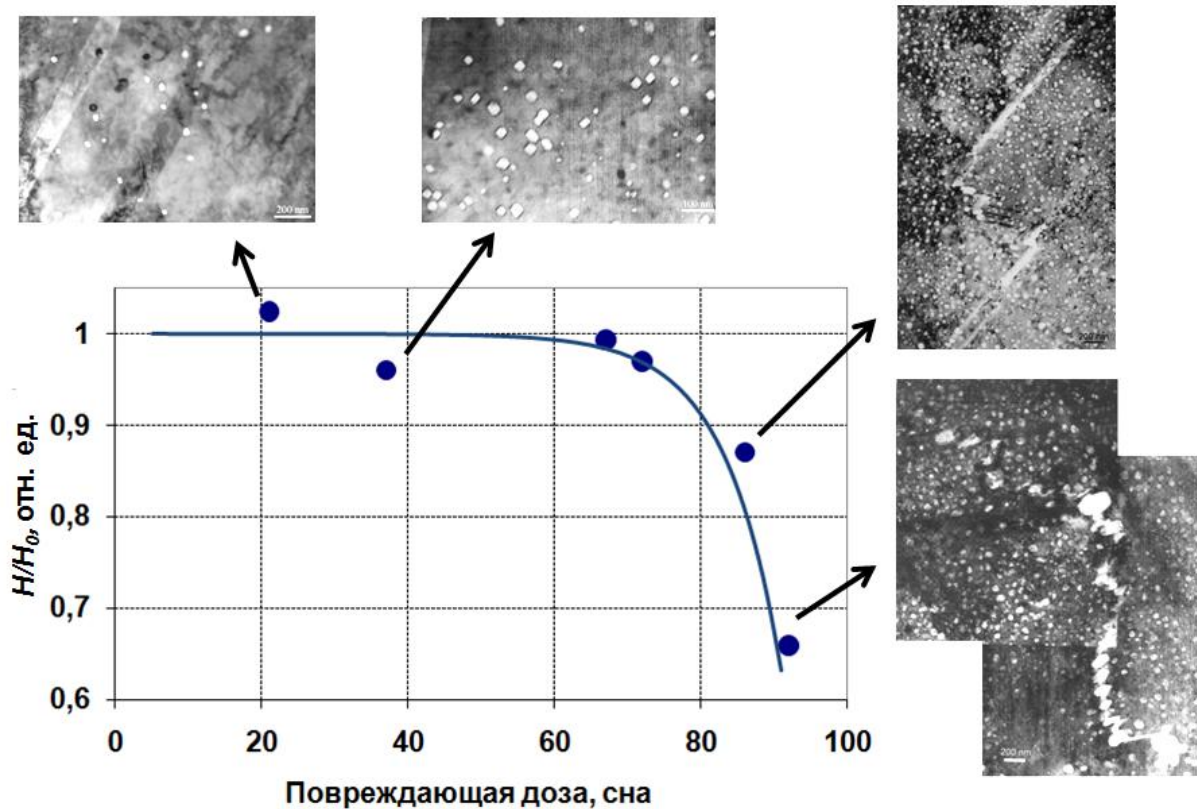


Рис. 11. Зависимость отношения H/H_0 (сталь ЧС-68 х.д.) от величины повреждающей дозы. Показана корреляция микроструктуры образцов оболочек твэлов и значения «эффективной жесткости» кристаллической решетки.

На рис. 11 видно, что в области повреждающих доз 70–90 сна наблюдается резкий спад «эффективной жесткости» кристаллической решетки, который связан с формированием цепочек случайно выстроенных пор. Таким образом, показано, что формирование цепочек случайно выстроенных пор является причиной резкого снижения скорости ультразвуковой волны и деградации «эффективной жесткости» кристаллической решетки.

«Эффективная жесткость» кристаллической решетки в пористом материале может быть также рассчитана по значениям модулей упругости, вычисленных в рамках приближения эффективной среды следующим образом:

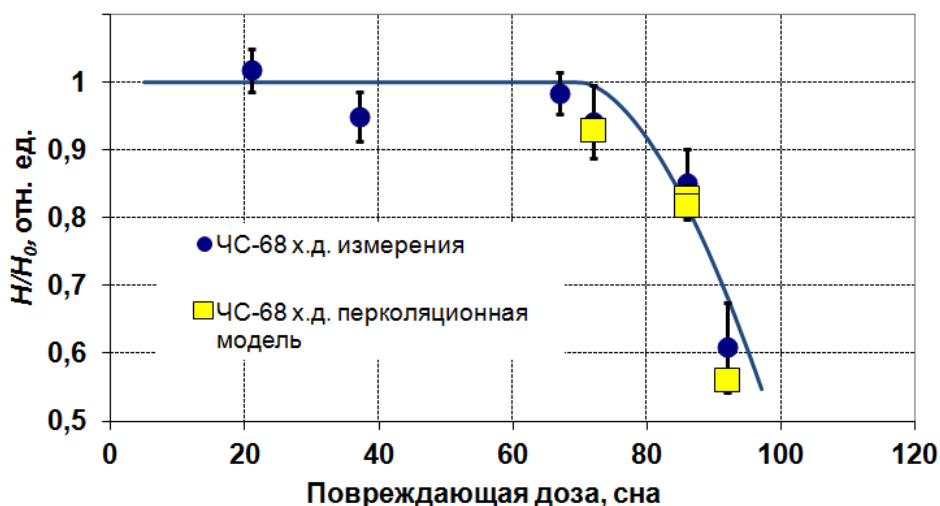
$$E = E_0 \left[1 - \frac{\Pi}{1 - \Pi_c} \right]^{1,7}, \quad (9)$$

$$G = G_0 \left[1 - \frac{\Pi}{1 - \Pi_c} \right]^{1,7}, \quad (10)$$

где E_0 и G_0 – соответственно модули Юнга и сдвига необлученного образца-свидетеля; Π_c – критическая пористость – параметр неоднородности материала, который определяет начало деградации «эффективной жесткости» кристаллической решетки. Согласно результатам анализа распределения пор по размерам цепочки случайно выстроенных пор в структуре материала возникают при значении пористости $\sim 17\%$.

Значения «эффективной жесткости» кристаллической решетки рассчитываются по формуле (8), в которой скорость звука определяется по значениям модуля Юнга и модуля сдвига (9) и (10) соответственно. На рис. 12 рассчитанные значения «эффективной жесткости» кристаллической решетки сопоставлены с экспериментальными значениями.

Рис. 12. Зависимость отношения H/H_0 от повреждающей дозы. Показаны данные расчета «эффективной жесткости» кристаллической решетки в зависимости от пористости.



Из рис. 12 видно, что рассчитанные значения «эффективной жесткости» кристаллической решетки в области повреждающих доз, превышающих штатную (~ 82 сна), хорошо совпадают с экспериментальными значениями. Эти результаты подтверждают применимость предлагаемой модели для анализа упругих свойств материала оболочек твэлов при достижении высоких повреждающих доз.

Зависимость H/H_0 от повреждающей дозы, приведенная на рис. 12, может быть аппроксимирована формулой вида:

$$\frac{H}{H_0} = 1 - \left[\frac{(D - D_0)}{(D_m - D_0)} \right]^{1.7}, \quad (12)$$

где $(D_m - D_0)$ – характеристическая «длина», на которой происходит резкий спад «эффективной жесткости» кристаллической решетки; D_0 – повреждающая доза, соответствующая критической пористости, выше которой начинается резкое уменьшение «эффективной жесткости» кристаллической решетки; D – повреждающая доза; D_m – максимальная повреждающая доза, достигнутая на материаловедческих образцах из данного вида стали при которой значение $H/H_0 \sim 0$.

Из экспериментальных данных для оболочек твэлов из стали ЧС-68 х.д. следует, что критической пористости $\sim 17\%$ соответствует величина D_0 , равная 70 сна. Максимальная повреждающая доза D_m , достигнутая на материаловедческих образцах из стали ЧС-68 х.д. в реакторе БН-600, составляет 108,7 сна. Кривая аппроксимации экспериментальных значений, проведенная по формуле (12) на рис. 12, с хорошей точностью описывает экспериментальные значения, что указывает на ее применимость. Также кривая аппроксимации указывает, что максимальная повреждающая доза, достигнутая на материаловедческих образцах, не может быть достигнута на твэле. Это объясняется развитием микротрещин на внутренней поверхности оболочки твэла в результате влияния топлива и других факторов ускоренного накопления повреждений.

В третьей главе выявлены закономерности поведения измеряемых параметров твэла, характеризующих его работоспособность, при достижении высоких повреждающих доз и получена формула, описывающая поведение служебных параметров оболочки твэла перед разрушением при облучении до высоких повреждающих доз.

В четвертой главе исследовано формоизменение оболочки твэла при высокодозном нейтронном облучении в реакторах на быстрых нейтронах. Выявлены факторы, ускоряющие развитие повреждений оболочки твэла в активной зоне.

При эксплуатации твэлов в реакторах на быстрых нейтронах (БН-600, БН-800, реакторах нового поколения) до высоких повреждающих доз необходимо принимать во внимание формоизменение оболочки. Этот параметр определяет проходное сечение теплоносителя, от которого, в свою очередь, зависит температурный режим эксплуатации твэла. Послеэксплуатационный анализ изменения формы твэла проведен в «горячей камере» БН-600 методом профилометрии.

На рис. 13 приведена типичная профилограмма твэла, прошедшего эксплуатацию в составе ТВС 1374 с максимальной повреждающей дозой по сборке 93 сна. Профилограмма показывает значения диаметров твэла, измеренных одновременно вдоль образующих двух перпендикулярных друг другу плоскостей продольного сечения (сплошная и пунктирная линии соответственно). Максимумы отношения $\Delta d/d$, измеренные вдоль образующих 0° (см. рис. 13), по координате совпадают с минимумами отношения $\Delta d/d$, измеренными вдоль образующей во взаимно перпендикулярной плоскости поперечного сечения. Интервал повторяемости подобных пиков соответствует шагу навивки дистанционирующей проволоки. Такие пики на профилограмме определяют области овализации оболочки.

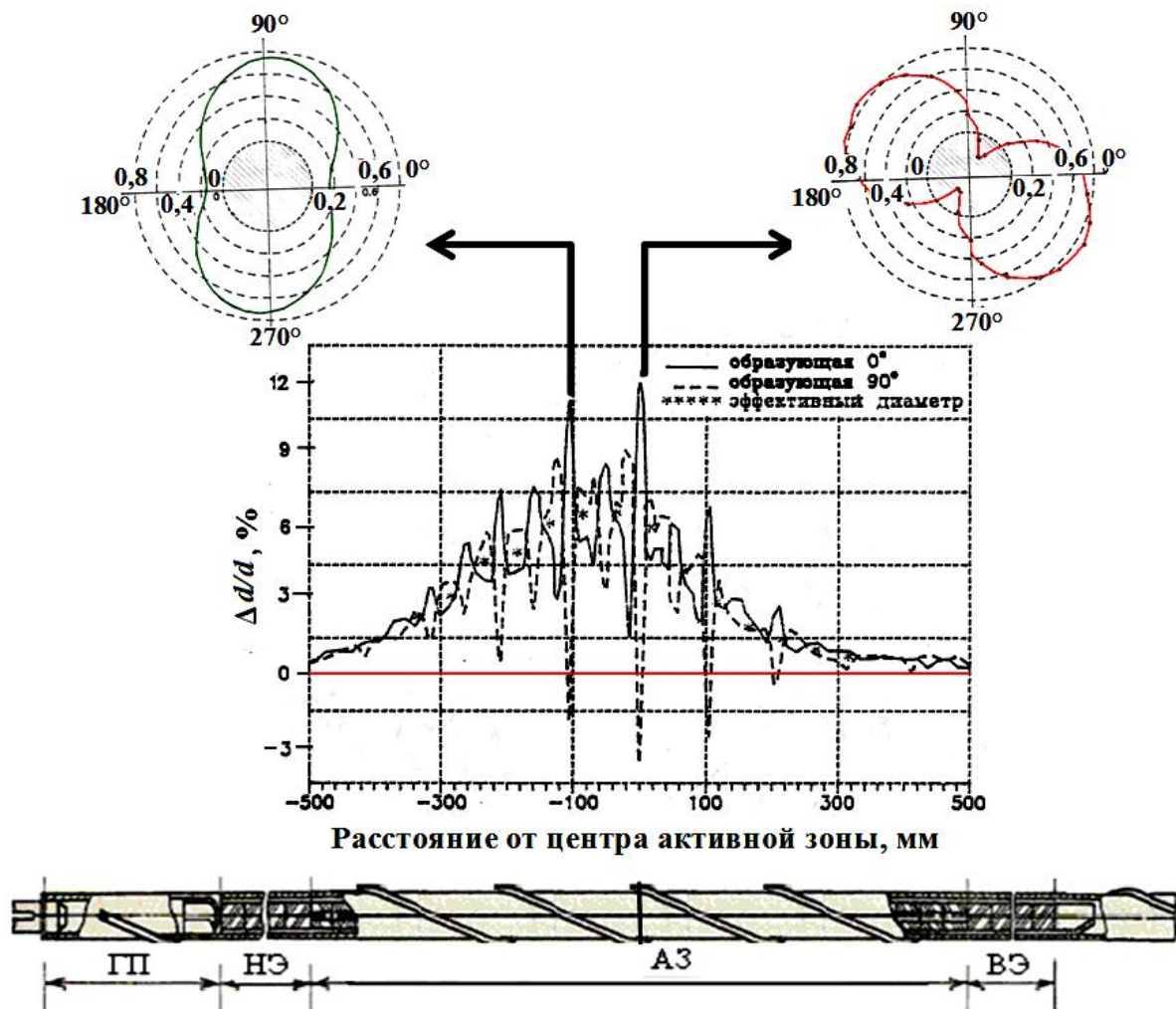


Рис. 13. Профилограмма твэла из ТВС 1374 по длине области твэла с топливом. На уровнях 10 мм и 114 мм ниже центра активной зоны проведена профилометрия с вращением твэла вокруг своей оси (см. вставки). На вставках пунктирная окружность с пометкой 0 изображает исходный диаметр оболочки твэла 6,9 мм; каждая последующая окружность – увеличение диаметра на 0,2 мм.

Более детальный анализ формы оболочки в областях овализации был проведен путем измерения профиля при вращении твэла вокруг своей оси. На рис. 14 приведена профилограмма твэла из ТВС 1374, полученная таким методом. Пунктирными линиями на рис. 14 нанесена координатная сетка круговой системы координат, у которой каждая окружность определяет диаметр твэла, причем внутренняя окружность с координатой «0», соответствует исходному значению (6,9 мм), а каждой последующей координате отвечает диаметр твэла, увеличенный на 0,2 мм.

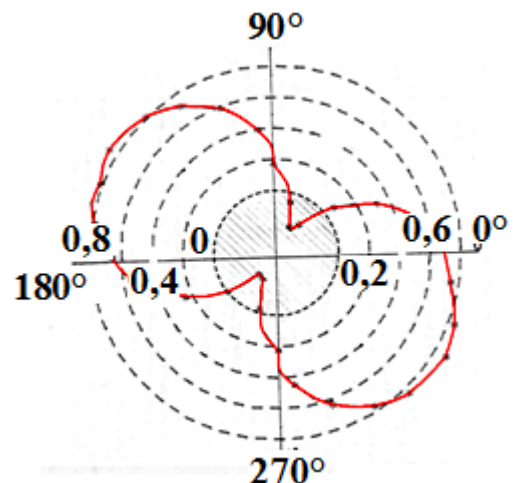


Рис. 14. Профилограмма твэла в области овализации, полученная методом вращения вокруг своей оси.

Из рисунка 14 видно, что вдоль линии воздействия дистанционирующей проволоки диаметр оболочки уменьшился. Механические напряжения, возникающие на внутренней поверхности оболочки твэла, в области уменьшенного диаметра оболочки приобретают растягивающий характер. Одновременное влияние разных факторов в области действия растягивающих напряжений приводит к ускоренному накоплению повреждений. В работе рассмотрены только те факторы, влияние которых может быть выявлено первичными послереакторными исследованиями.

Одним из наиболее важных факторов является химическое взаимодействие коррозионно-активных продуктов деления топлива (Cs, I, Te) с оболочкой. Продукты деления создают активную среду для развития коррозионного растрескивания внутренней поверхности оболочки твэла, находящейся под влиянием растягивающих напряжений. Локализация коррозионно-активных продуктов деления в местах овализации оболочки подтверждена путем исследования их распределения по длине твэла. На рис. 15 приведен гамма-спектр ^{137}Cs , измеренный по высоте твэла, облученного в составе ТВС 1374, который показывает распределение ^{137}Cs . Этот гамма-спектр сопоставлен с профилограммой твэла.

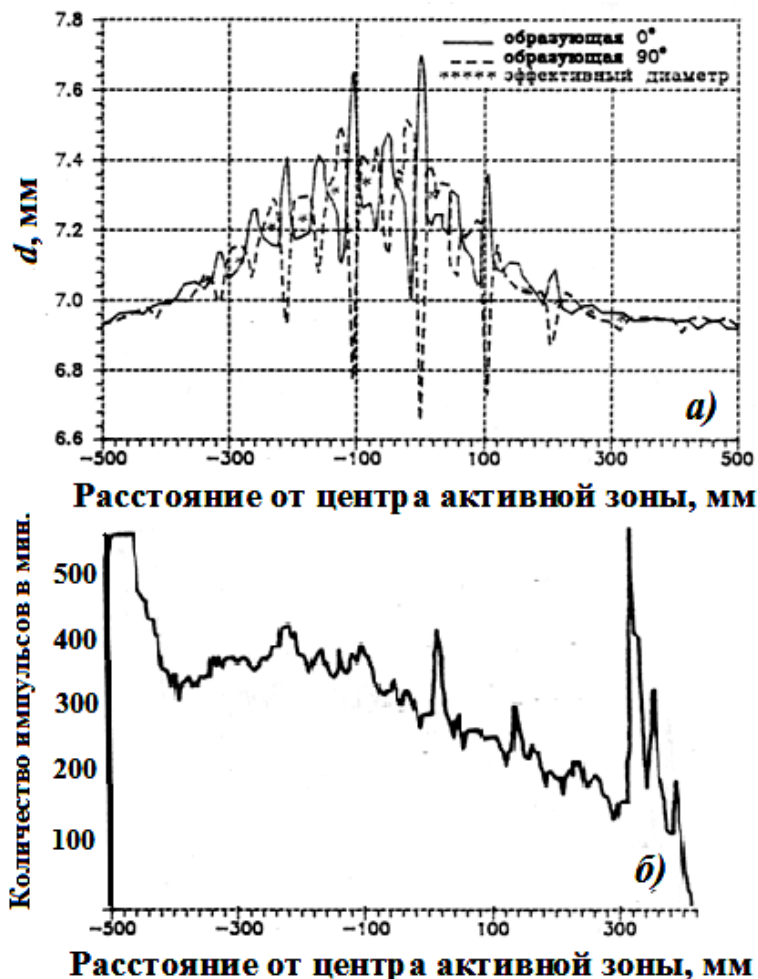


Рис. 15. Профилограмма (а) и гамма - спектр ^{137}Cs (б), измеренные по длине топливного столба герметичного твэла ТВС 1374.

Из рис. 15 видно, что достаточно широкие пики гамма-спектра, выделяющиеся на общем фоне, расположены с периодичностью шага навивки дистанционирующей проволоки. Это означает, что в областях овализации оболочки твэла идет процесс накопления коррозионно-активных продуктов деления. Причина такого процесса может быть связана с локальными температурными флуктуациями. В атмосфере коррозионно-активных продуктов деления в области высоких растягивающих напряжений это ведет к ускоренному накоплению повреждений и к растрескиванию оболочки.

Выявить распределение повреждений оболочки по высоте герметичного твэла позволяет метод импульсной вихретоковой дефектоскопии. На рис. 16 приведены ответные сигналы импульсов вихревых токов – «стробы», которые сопоставлены с профилограммой твэла, прошедшего эксплуатацию в составе ТВС 1374. Видно, что в областях овализации оболочки имеются дефекты, анализ которых возможен только методами металлографии.

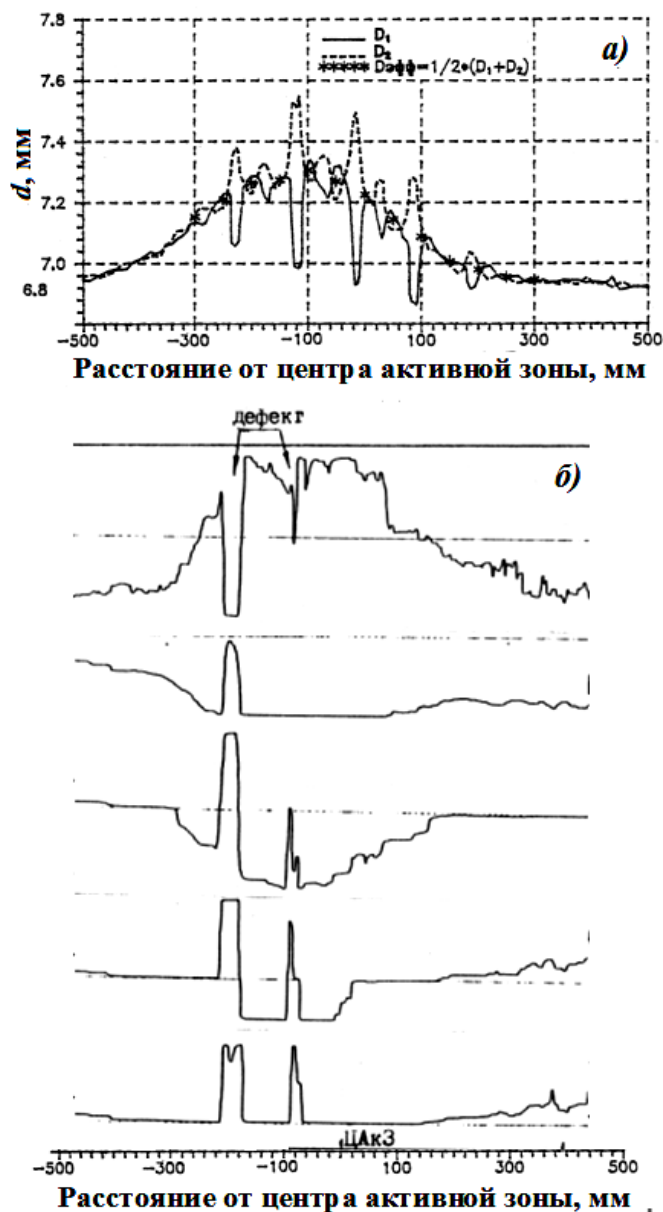


Рис. 16. Профилограмма (а) и стробы импульсной вихретоковой дефектоскопии (б), измеренные по длине топливного столба герметичного твэла ТВС 1374.

Подобные металлографические исследования были проведены на твэле, разгерметизировавшемся в «горячей камере» Белоярской АЭС. На рис. 17 приведен снимок металлографического шлифа поперечного сечения твэла ТВС 1374, сделанного в области овализации.

На рис. 17 видно, что на внутренней поверхности оболочки в области соприкосновения оболочки твэла с дистанционирующей проволокой, присутствуют глубокие трещины. Сама оболочка твэла, как видно на рис. 17, в этих областях пластически деформирована.

Таким образом, показано, что в областях овализации происходит ускоренное накопление повреждений оболочки, вызванные накоплением коррозионно-активных продуктов деления. При длительной эксплуатации твэла указанные повреждения могут приводить к его разрушению. На эту проблему впервые обратили внимание французские специалисты. В результате анализа нескольких случаев разгерметизации, связанных с овализацией оболочки, во Франции выработаны критерии, ограничивающие длительность эксплуатации ТВС, – момент соприкосновения пучка твэлов с чехлом ТВС.

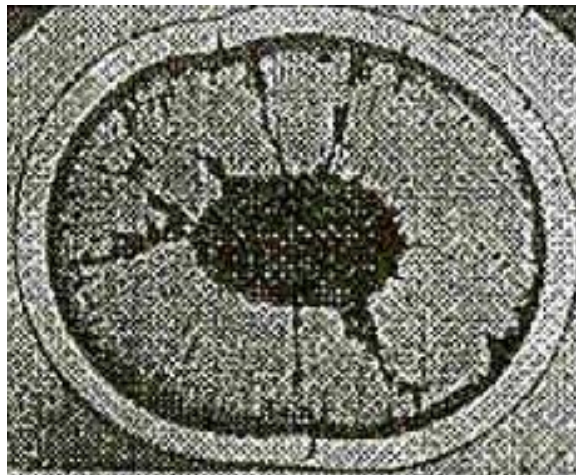


Рис. 17. Снимок металлографического шлифа поперечного сечения твэла, сделанный в области овализации.

В России оценка длительности эксплуатации оболочек твэлов реактора БН-600 в штатном режиме проводится по программным кодам. Одним из них является PINCOD. Расчет распухания материала оболочки твэла по программе PINCOD проводится в приближении линейной зависимости относительного изменения объема оболочки твэла от повреждающей дозы. В качестве исходных данных для расчета распухания материала используют параметры облучения твэлов (распределение повреждающей дозы, выгорания, температуры по высоте твэла и пр.).

Расчет изменения диаметра твэла проведен с учетом давления газообразных продуктов деления и механического взаимодействия топлива с оболочкой, соответствующих сверхштатным параметрам эксплуатации. Полученные таким образом значения формоизменения для твэла из ТВС 0841 приведены на рис. 18.

Рассчитанные, по программе PINCOD, значения формоизменения на рис. 18 сопоставлены с профилограммой этого твэла. Видно, что представленные данные хорошо совпадают. Они также совпадают со значениями формоизменения, измеренными на образцах оболочки твэла. В областях овализации оболочки твэла истинные значения диаметра значительно отличаются от значений, предсказанных расчетом. Причина такого различия заключается в механическом взаимодействии твэлов между собой, что в программном коде PINCOD не учитывается. Следовательно, значения формоизменения, полученные расчетом по программе PINCOD, существенно отличаются от экспериментальных данных.

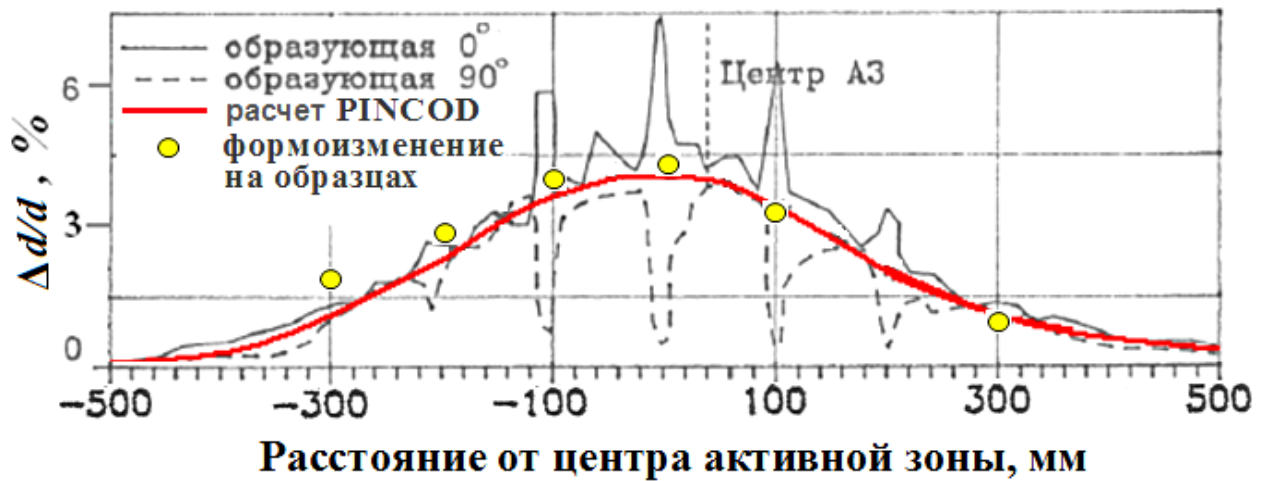
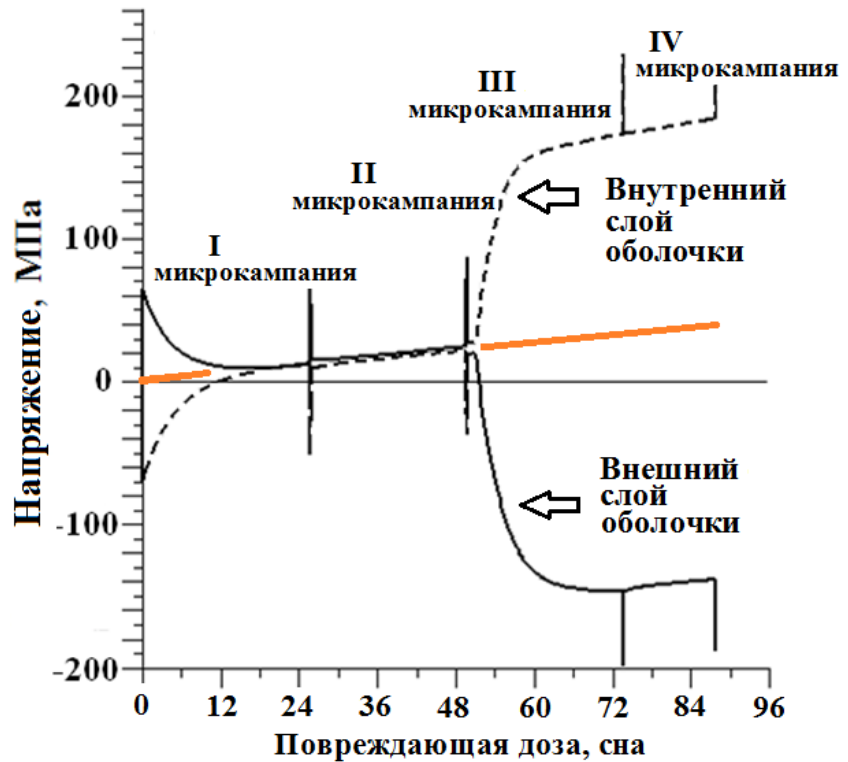


Рис. 18. Профилограмма твэла, прошедшего эксплуатацию в составе ТВС 0841, и значения формоизменения, полученные расчетом по программе PINCOD, а также измеренные на образцах оболочек твэлов.

По значениям формоизменения в рамках программы PINCOD рассчитаны значения противодействующих формоизменению механических напряжений, создаваемых оболочкой твэла. Для проведения таких расчетов оболочка твэла условно разделена на внутренний и внешний слой. Расчет проводился отдельно для каждого слоя, а затем результаты «сшивались» предполагая, что деформация границ шивки обоих слоев проходит одинаково. На рис. 19 приведены результаты расчета внутренних напряжений в оболочке твэла, отвечающие уровню 15 мм выше центра активной зоны по длине твэла.

Рис. 19. Кинетика изменения напряжений на условно выделяемых внутреннем (пунктирная линия) и внешнем (сплошная линия) слоях оболочки твэла. Расчет проведен на уровне 15 мм выше центра активной зоны твэла, прошедшего эксплуатацию в ТВС 0841.



Отрицательные значения напряжений на рис. 19 имеют характер сжимающих, положительные значения – характер растягивающих напряжений. Видно, что на

внутреннем слое оболочки изначально сжимающий характер напряжений, а на внешнем слое оболочки – растягивающий.

В первых двух микрокампаниях напряжения на внутреннем и внешнем слоях оболочки твэла постепенно выравниваются. Это связано с их термической релаксацией. В течение третьей микрокампании происходит изменение знаков напряжений: на внутреннем слое напряжения становятся растягивающими, а на внешнем слое – сжимающими. Причина такого изменения заключается в том, что на любом уровне по высоте твэла температура на внешнем слое оболочки ниже температуры на внутреннем слое.

На рис. 19 прямая линия, выходящая из начала координат, соответствует среднему значению противодействующих механических напряжений, создаваемых оболочкой твэла. При повреждающей дозе 84 сна среднее напряжение не превышает 40 МПа. Среднее значение противодействующих механических напряжений, создаваемых оболочкой твэла, при повреждающей дозе 84 сна не превышает предела кратковременной прочности (см. рис. 4). Это является обоснованием возможности дальнейшей эксплуатации твэлов с оболочкой из стали ЧС-68 х.д. Однако линейный характер изменения среднего значения напряжений определяет возможный остаточный ресурс ~ 15–20 сна, что соответствует прогнозам «эффективной жесткости» кристаллической решетки.

Таким образом, показано, что для оценки работоспособности твэлов реакторов на быстрых нейтронах (БН-600, БН-800, реакторов нового поколения) необходимо учитывать механическое взаимодействие пучка твэлов с чехлом ТВС, которое приводит к оваллизации оболочки. Рассчитаны значения напряжения, возникающие на внутреннем и внешнем слоях оболочки, и показано, что среднее внутритвэльное давление не превышает предел прочности стали ЧС-68 х.д.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. На основе экспериментов выделены факторы, определяющие потерю геометрической стабильности оболочек твэлов, в которое входит, в том числе, и взаимодействие твэлов друг с другом через дистанционирующую проволоку вследствие ограничения деформации пучка твэлов со стороны не распухающего чехла ТВС.
2. Показано, что «эффективная жесткость» кристаллической решетки может быть выбрана в качестве основного параметра, характеризующего механическую стабильность облученной оболочки твэла при сверхштатных повреждающих дозах и распуханиях, превышающих 10–12%.
3. Предложена модель разрушения оболочки при достижении критического значения дозы: образуются цепочки вакансионных пор, вдоль которых происходит разрушение.
4. Показана резкая деградация упругих модулей стали ЧС-68 х.д. в зависимости от повреждающей дозы в окрестности перколяционного предела, связанного с системой пор, созданных облучением.
5. Предложена формула, определяющая закономерность деградации «эффективной жесткости» кристаллической решетки в зависимости от повреждающей дозы.
6. Показано, что в областях оваллизации оболочки твэла происходит ускоренное накопление повреждений, приводящее к дополнительному снижению остаточного ресурса твэла.
7. Показано, что при проведении расчетов с использованием программного пакета PINCOD необходимо учитывать оваллизацию твэла при высоких повреждающих дозах.

Основные публикации по теме диссертации

1. Коростин О.С., Коновалов И.И., Митюрёв К.В., Портных И.А., Ершова О.В., Щербаков Е.Н. «Эффективная жесткость» кристаллической решетки как характеристика деградации свойств облученных материалов. – Ядерная физика и инжиниринг, 2010, т. 1, № 4, с. 314–318.
2. Коновалов И.И., Чуев В.В., Митюрёв К.В. Выявление факторов ускоренного накопления повреждений в оболочках твэлов, облученных в реакторе БН-600, неразрушающими методами контроля. – Известия вузов. Ядерная энергетика, 2011, № 2, с. 171–180.
3. Гуденко А.С., Портных И.А., Митюрёв К.В. Использование программного комплекса анализа изображений для оценки состояния твэлов реакторов на быстрых нейтронах. – Металловедение и термическая обработка металлов, 2011, № 8 (674), с. 46–50.
4. Коновалов И.И., Попов В.В., Ганина С.М., Митюрёв К.В. Оценка остаточного ресурса аустенитной стали ЧС-68 материала оболочек тепловыделяющих элементов реактора БН-600. – Известия вузов. Ядерная энергетика, 2012, № 1, с. 149–158.
5. Митюрёв К.В., Ершова О.В., Портных И.А., Щербаков Е.Н., Асипцов О.И. Связь радиационно-индуцированных изменений характеристик кристаллической решетки стали ЧС-68 с температурой и дозой нейтронного облучения. – ВАНТ. Серия: Металловедение и новые материалы, 2007, вып. 1(70), с. 273.
6. Митюрёв К.В., Ершова О.В., Портных И.А., Щербаков Е.Н., Асипцов О.И. Связь радиационно-индуцированных изменений характеристик кристаллической решетки стали ЧС-68 с температурой и дозой нейтронного облучения. – В сб.: Научные труды сессии МИФИ–2007. М.: МИФИ, 2007 г., т.1, с. 165.
7. Митюрёв К.В., Коновалов И.И., Щербаков Е.Н., Шихалев В.С. Зависимости радиационно-индуцированных изменений характеристик кристаллической решетки стали ЧС-68 с температурой и дозой нейтронного облучения. – В сб.: Научные труды сессии НИЯУ МИФИ 2009. М.: МИФИ, 2009 г., т.1, с. 251.
8. Митюрёв К.В., Коновалов И.И., Щербаков Е.Н., Шихалев В.С. Анализ радиационно-индуцированных изменений характеристик кристаллической решетки стали ЧС-68 от температуры и дозы нейтронного облучения. В сб.: Научные труды сессии НИЯУ МИФИ 2010. М.: МИФИ, 2010 г., т.2, с. 94.
9. Коновалов И.И., Митюрёв К.В., Попов В.В., Ганина С.М. Сравнение результатов неразрушающего контроля твэлов реактора БН-600 и программного расчета. В сб.: Научные труды сессии НИЯУ МИФИ 2011. М.: МИФИ, 2011 г., т.1, с. 156.
10. Коновалов И.И., Митюрёв К.В., Попов В.В., Ганина С.М. Влияние изменения геометрии твэлов, облученных в реакторе БН-600, на их ресурс при повышенных выгораниях. – В сб.: Труды XXI Международной конференции «Радиационная физика твердого тела», Севастополь, 22–27 августа 2011 г., т. 2, с. 456–457.