

изменения из-за взаимодействия частиц диоксида урана с матрицей в указанных твэлах от $-1,3$ до $-1,4\%$ вклад в распухание за счет твердых продуктов деления составляет $\sim 30\%$. Эффект взаимодействия отрицательный — вклад в распухание -5% , т.е. объем образовавшегося при взаимодействии материала сокращается, сердечник уплотняется.

Заключение. Исследования позволяют отметить преимущества в поведении при облучении опытных твэлов с дисперсионной топливной композицией диоксид урана—силумин и вытеснителем в сердечнике. Применение вытеснителя позволило равномерно распределить топливные частицы в сердечнике и снизить его рабочую температуру. Вследствие этого твэлы показали удовлетворительную радиационную стойкость при плотности теплового потока $5,8—8 \text{ МВт/м}^2$ и выгорании до 45% . Признаков перегрева матрицы и потери ею способности к удержанию газообразных продуктов деления не обнаружено.

Распухание топливной композиции в наиболее напряженном по параметрам испытаний твэле составило 26% , сердечника (топливо + вытеснитель) — 14% , что соответствует ожидаемым пределам для достигнутого выгорания. Измерение распухания и анализ исследования структуры топлива после облучения дают основания полагать, что из трех возможных составляющих распухания: за счет газообразных и твердых продуктов деления и изменения струк-

туры (появления промежуточного материала вследствие взаимодействия компонентов — частиц диоксида и матрицы) основной вклад вносит распухание за счет газообразных продуктов деления, примерно $3/4$ общего распухания. Взаимодействие компонентов топлива приводит к уплотнению сердечника, способствует некоторой компенсации распухания. Эта компенсация — объемный эффект взаимодействия возрастает по мере увеличения степени взаимодействия компонентов.

Исследования позволяют утверждать, что глубина выгорания твэлов с вытеснителем при достигнутой плотности теплового потока не является предельной.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гильмутдинов И.Ф., Шишин В.Ю., Старков В.А. и др. Исследование опытных дисперсионных твэлов с матрицей на основе алюминия для высокопоточных исследовательских реакторов. — Атомная энергия, 2015, т. 118, вып. 2, с. 80—84.
2. Цыканов В.А., Клинов А.В., Старков В.А. и др. Основные итоги первого этапа модернизации активной зоны СМ. — Там же, 2007, т. 102, вып. 2, с. 86—92.
3. Клинов А.В., Калинин Н.К., Пименов В.В. и др. Испытания экспериментальных ТВС с малым вредным поглощением нейтронов в реакторе СМ. — Изв. вузов. Ядерная энергетика, 2013, № 2, с. 114—122.
4. Грачев В.Д. Некоторые вопросы математической реализации метода конечных элементов в задачах реакторной теплофизики: Препринт НИИАР-6 (652). М., ЦНИИАтоминформ, 1985.

Поступила в Редакцию 26.09.17

УДК 621.039.548.5

АКСИАЛЬНАЯ И АЗИМУТАЛЬНАЯ АСИММЕТРИЯ ОКИСЛЕНИЯ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ РБМК-1000

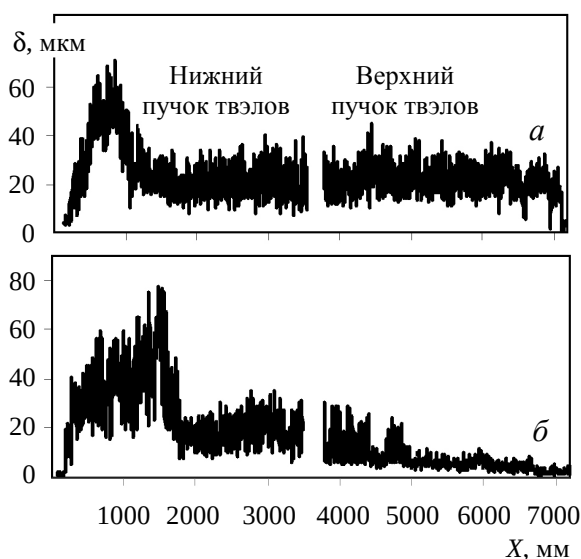
*Сухих А.В., Сагалов С.С. (АО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград),
Павлов С.В. (ДИТИ НИЯУ МИФИ, ООО НПФ «Сосны», г. Димитровград)*

Материаловедческие исследования обработавших ТВС РБМК выявили на оболочках твэлов из сплава $\text{Zr—1\%Nb}$ (Э-110) два вида коррозии: равномерную и нодулярную (очаговую). В интервале $1500—3000$ сут эксплуатации скорость равномерной коррозии уменьшается и толщина оксидных пленок, хорошо сцепленных с металлом, не превышает 20 мкм . Очевидно, что равномерная оксидная пленка такой толщи-

ны не может оказывать значительного влияния на ресурс твэлов. Нодулярная коррозия сплава Э-110 снижает технико-экономические показатели и безопасность эксплуатации АЭС с РБМК-1000 из-за утонения оболочек твэлов и появления большого количества шлама в контуре циркуляции теплоносителя. Однако до настоящего времени нет общепризнанного понимания механизмов ее возникновения и развития [1].

Коррозионное состояние облученных твэлов изучали в материаловедческом комплексе АО «ГНЦ НИИАР» неразрушающим вихретоковым методом измерения толщины оксидного слоя на поверхности оболочек. С его помощью выявлено наличие аксиальной и азимутальной неравномерности нодулярного окисления наружной поверхности твэлов ТВС РБМК-1000, отработавших на первых двух энергоблоках Ленинградской АЭС до выгорания 6,1—35,7 МВт·сут/кг [2, 3]. В настоящей статье рассмотрены особенности проявления и причины возникновения неравномерной нодулярной коррозии. Закономерности окисления твэлов под дистанционирующими решетками в настоящей работе не исследовали, поэтому толщина оксидов на этих участках на рисунках не показана.

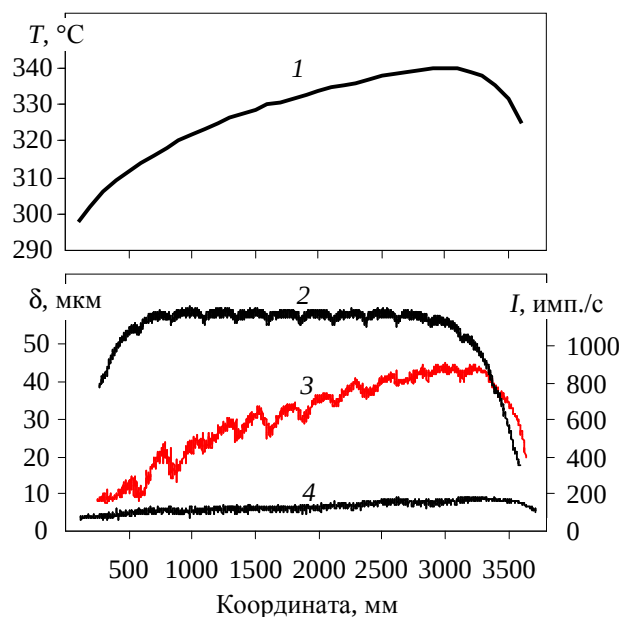
Аксиальная асимметрия окисления оболочек твэлов. На рис. 1 показано типичное распределение толщины оксидного слоя по длине твэлов нижнего и верхнего пучков ТВС, которые отработали на мощности 1,7—2,2 МВт в каналах центральной части активной зоны реактора, расположенных в области плато потока нейтронов. Анализ показал, что наибольшее нодулярное окисление оболочек наблюдается преимущественно в нижней части ТВС, выше участка с максимальной коррозией происходит значительное уменьшение толщины оксидного слоя, протяженность зоны повышенного окисления варьируется в широком диапазоне (0,2—0,6 длины твэлов).



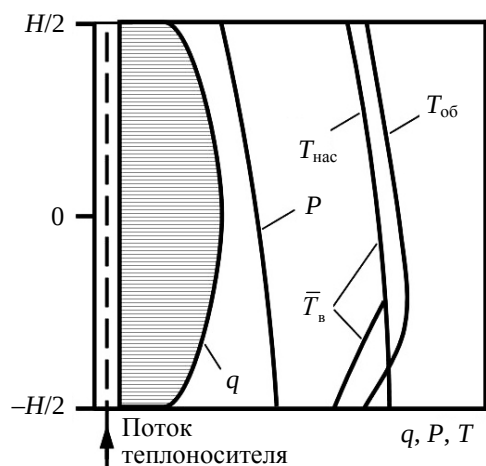
Р и с. 1. Толщина оксидов на оболочках твэлов двух ТВС, отработавших до выгорания 26,1 (а) и 35,7 МВт·сут/кг (б)

Согласно электрохимической теории высокотемпературного окисления металлов скорость коррозии оболочек твэлов из циркониевых сплавов определяется переносом анионов кислорода через оксидную пленку и зависит от ее толщины, структуры, а также шунтирующего тока электронов в диоксиде циркония [4]. Вместе с тем многочисленные исследования показали наличие неравномерного окисления по длине облученных твэлов водоохлаждаемых реакторов, что связывают с условиями эксплуатации: изменениями температуры, нейтронного потока, водно-химических параметров теплоносителя по высоте активной зоны. Так, выявлено, что толщина оксидной пленки на поверхности твэлов ВВЭР увеличивается пропорционально температуре оболочки (рис. 2) [5]. Уменьшение скорости окисления на участках с пониженной концентрацией ^{137}Cs , особенно заметное для оболочек из сплава Э-635, связано с паразитным захватом потока тепловых нейтронов материалом дистанционирующих решеток, а также турбулизацией потока теплоносителя в местах их расположения.

На рис. 3 показано изменение температурных параметров в технологическом канале РБМК-1000 при косинусоидальном распределении плотности теплового потока q на поверхности твэла по высоте H канала. По характеру теплообмена технологический канал делится на



Р и с. 2. Изменение температуры оболочки твэлов (1), скорости счета ^{137}Cs (2), толщины оксидной пленки на поверхности оболочек из сплава Э-635 (3) и Э-110 (4) по высоте активной зоны ВВЭР-1000



Р и с. 3. Распределение по высоте технологического канала РБМК средней плотности теплового потока, температуры оболочки твэла, температуры насыщения воды, среднемассовой температуры и давления теплоносителя [6]

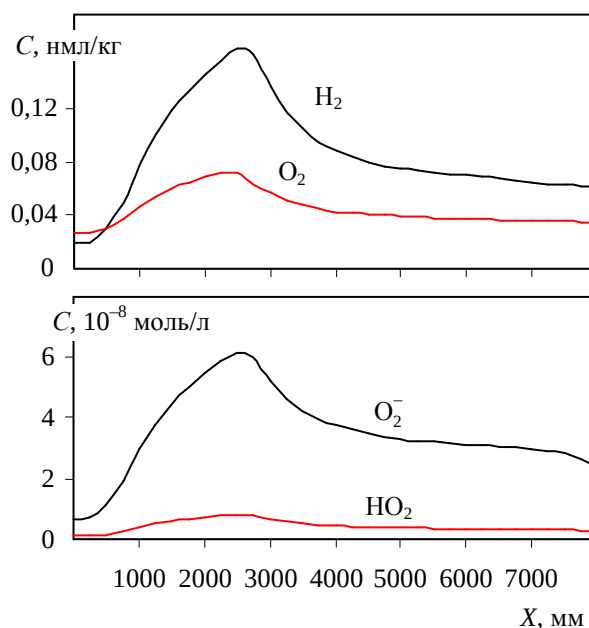
три основные зоны: подогрева воды (экономайзерная зона), поверхностного и объемного кипения. При этом температура оболочки $T_{об}$ достигает своего максимума в зоне поверхностного кипения, т.е. в нижней части ТВС, где среднемассовая температура теплоносителя $\bar{T}_в$ меньше температуры насыщения воды $T_{нас}$, а температура оболочки ее превышает. По мере роста массового паросодержания и снижения давления теплоносителя P уменьшается температура оболочки из-за увеличения интенсивности теплообмена и снижения температуры насыщения.

Из анализа рис. 1—3 следует, что максимальное окисление в нижней части ТВС РБМК может быть следствием распределения температуры оболочки по высоте активной зоны. Однако значительное уменьшение толщины оксидного слоя сразу после участка с наибольшей коррозией трудно объяснить только температурой, поскольку ее снижение после достижения максимума происходит плавно до верхней части ТВС.

Известно, что окисление оболочек из циркониевых сплавов в значительной степени определяется радиолизом воды. В реакторах кипящего типа содержание радиолитических газов H_2 и O_2 изменяется по высоте активной зоны в зависимости от фазового состояния теплоносителя. На участке однофазного течения их концентрация возрастает по мере увеличения плотности потока ионизирующего излучения, с началом кипения кислород, как и водород, начинает выходить в пар, и его содержание в

жидкой фазе значительно уменьшается. Это приводит к изменению концентрации и других окислительных продуктов радиолиза. После закипания воды происходит быстрое уменьшение в жидкой фазе содержания гидропероксидного и супероксидного радикалов HO_2 и O_2^- , которые способны существенно повлиять на окислительные свойства теплоносителя по отношению к циркониевому сплаву. На рис. 4 результаты расчета, полученные при заданных мощности ТВС и скорости теплоносителя, качественно иллюстрируют неравномерное содержание в воде продуктов радиолиза по высоте технологического канала РБМК-1000.

Исходя из изложенного, можно предположить, что значительное уменьшение толщины оксидов после участка с максимальной коррозией, например, в координатах 850—1300 мм обусловлено снижением концентрации окислительных продуктов радиолиза около оболочки вследствие интенсификации процесса кипения (см. рис. 1, а). В этом случае разная протяженность зон повышенного окисления исследованных сборок объясняется следующим образом. Согласно техническому проекту РБМК-1000 типичное аксиальное энерговыделение в ТВС (симметричное поле, а также со смещенным вверх или вниз максимумом) имеет коэффициент неравномерности $k_z \sim 1,4$, температура теплоносителя на входе в технологический канал

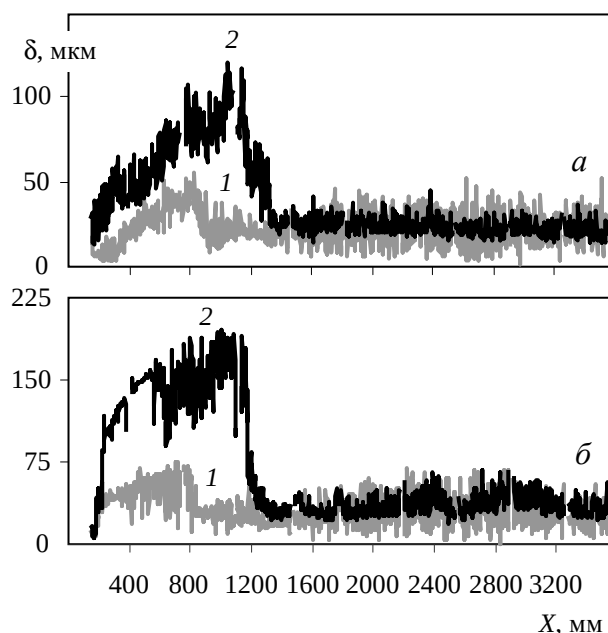


Р и с. 4. Изменение концентрации продуктов радиолиза в жидкой фазе теплоносителя по высоте активной зоны РБМК-1000 [7]

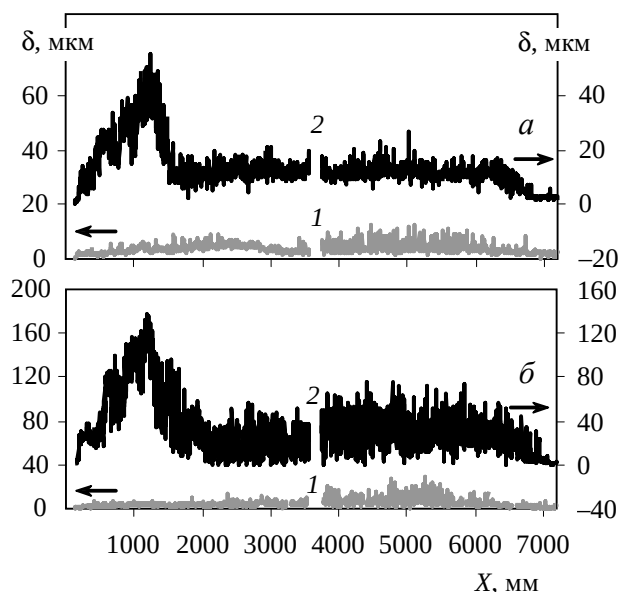
при номинальном уровне мощности может изменяться в интервале 265—270 °С. Кроме того, отношение мощности ТВС к расходу теплоносителя варьируется для разных каналов активной зоны в широком диапазоне [8]. Поэтому особенностью РБМК-1000 является значительное изменение длины экономайзерной зоны, а также участков с поверхностным и объемным кипением при эксплуатации ТВС на различном уровне энерговыделения, скорости теплоносителя и его температуры на входе в технологический канал.

Азимутальная асимметрия окисления оболочек твэлов. Наряду с аксиальной в большинстве исследованных сборок была обнаружена азимутальная асимметрия окисления твэлов между дистанционирующими решетками. Твэлы внутреннего ряда ТВС окислялись интенсивнее, чем наружного ряда, на поверхности оболочки, ориентированной к центру ТВС, толщина оксидного слоя была, как правило, больше, чем с противоположной стороны [2]. Одной из возможных причин азимутальной асимметрии окисления является радиальная неравномерность потока быстрых нейтронов, влияние которых на коррозию циркониевых сплавов связывают с радиолизом теплоносителя, нарушением структуры оболочки и оксидной пленки [1]. Нейтронно-физические расчеты методом Монте-Карло по программам MCU и MCNP свидетельствуют об увеличении плотности потока быстрых нейтронов от периферии к центру технологического канала РБМК [9].

Во многих ТВС на поверхности твэлов нижнего пучка, обращенной к центру, наибольшей была не только глубина коррозии, но и протяженность участка повышенного окисления (рис. 5). В некоторых сборках на поверхности твэлов, ориентированной к графитовой кладке, характерное увеличение окисления в нижней части почти отсутствовало, по всей высоте активной зоны толщина оксидов в этой ориентации не превышала 10—20 мкм (рис. 6). При этом с противоположной стороны она была в 5—10 раз больше. Причиной указанных эффектов может являться неравномерное распределение плотности потока тепловых нейтронов по радиусу технологического канала [10]. Коэффициент радиальной неравномерности $k_R \sim 1,15$ обусловлен депрессией потока нейтронов со



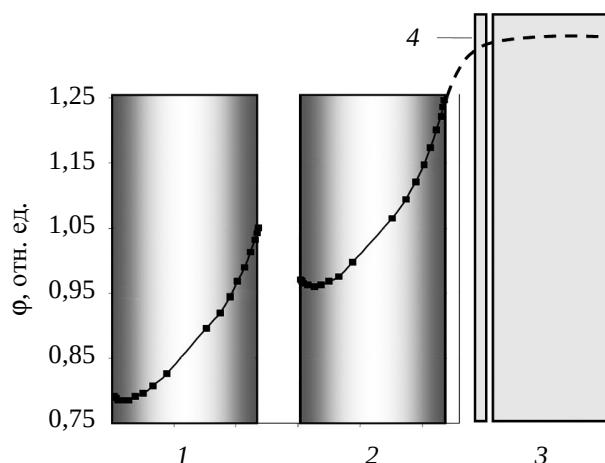
Р и с. 5. Толщина оксидов на поверхности твэлов нижнего пучка, обращенной к графитовой кладке (1) и центру ТВС (2), выгоранием 28,4 (а) и 34,3 МВт·сут/кг (б)



Р и с. 6. Толщина оксидов на поверхности твэлов, обращенной к графитовой кладке (1) и центру ТВС (2), выгоранием 14,3 (а) и 26,4 МВт·сут/кг (б)

стороны графитовой кладки во внешнем и внутреннем рядах твэлов (рис. 7). Это приводит к большему тепловому потоку с поверхности твэла, ориентированной к графитовой кладке, и более раннему по высоте ТВС вскипанию теплоносителя, чем с противоположной стороны. На радиальную неравномерность подогрева воды оказывает влияние и тепловой поток от графитового замедлителя [11].

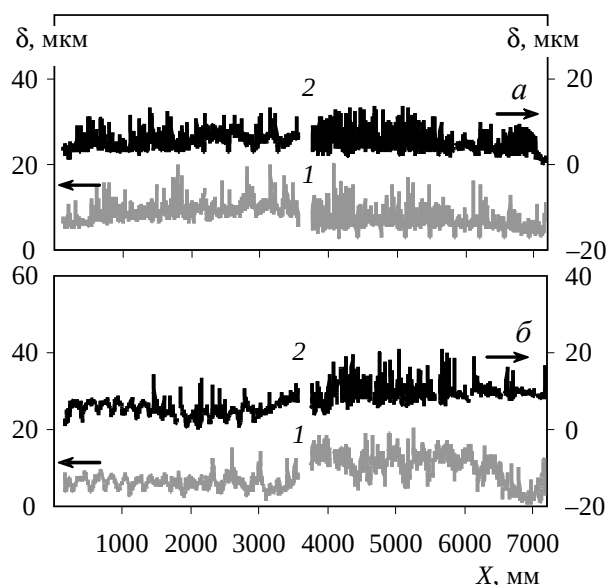
В составе двух ТВС, отработавших до выгорания 26,2 и 27,5 МВт·сут/кг, выявлено большое



Р и с. 7. Изменение плотности потока тепловых нейтронов по радиусу ТВС РБМК [10]: 1, 2 — внутренний и наружный ряд твэлов соответственно; 3 — графитовая кладка; 4 — стенка технологического канала

число твэлов, у которых отсутствовал характерный участок с повышенным окислением на поверхности, обращенной как к графитовой кладке, так и внутрь сборки (рис. 8). Не исключено, что при эксплуатации этих ТВС сложились благоприятные условия (температура на входе, содержание кислорода, скорость теплоносителя и др.), которые способствовали уменьшению коррозии оболочек до минимального уровня, сопоставимого с толщиной оксидных пленок твэлов ВВЭР-1000 (10—20 мкм).

Исходя из научной и практической значимости рассматриваемой проблемы, необходимы дальнейшие исследования причин асимметрии нодулярной коррозии оболочек твэлов РБМК-1000. В настоящее время нет методов



Р и с. 8. То же, что на рис. 6, для выгорания 26,2 (а) и 27,5 МВт·сут/кг (б)

экспериментального определения содержания короткоживущих продуктов радиолиза по высоте технологического канала, но их концентрация может быть рассчитана. Для контроля и изучения температурного режима оболочек возможно применение ТВС с термопреобразователями, размещенными в различных точках по высоте и периметру твэлов [12].

Закключение. Анализ коррозионного состояния ТВС, отработавших на средней мощности 1,7—2,2 МВт в зоне плато РБМК-1000, показал:

максимальная толщина оксидного слоя на поверхности твэлов наблюдается преимущественно в нижней части ТВС, где согласно расчетам температура оболочки и концентрация в теплоносителе окислительных продуктов радиолиза максимальны;

на поверхности твэлов, ориентированной к центру ТВС, толщина оксидного слоя, как правило, больше, чем с противоположной стороны, что согласуется с радиальным распределением плотности потока быстрых нейтронов в технологическом канале. Некоторые особенности азимутальной асимметрии окисления могут быть следствием неравномерного подогрева теплоносителя по периметру оболочки. Из-за депрессии потока тепловых нейтронов во внешнем и внутреннем рядах твэлов ТВС, а также тепловыделения со стороны графитовой кладки на поверхности твэла, обращенной наружу сборки, происходят более раннее по высоте технологического канала вскипание теплоносителя, снижение температуры оболочки и содержания в жидкой фазе окислительных продуктов радиолиза;

в технологическом канале возможны такие условия эксплуатации, при которых асимметрия окисления оболочек почти отсутствует, а скорость коррозии на участках между дистанционирующими решетками сопоставима с темпами окисления твэлов ВВЭР-1000.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Никулина А.В. Нодулярная коррозия циркониевых изделий. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2012, вып. 1(72), с. 79—89.
2. Костюченко А.Н. Распределение оксидной пленки на наружной поверхности цилиндрических элементов отработавших ТВС ВВЭР и РБМК. — Атомная энергия, 2007, т. 102, вып. 6, с. 383—385.

3. Павлов С.В., Сухих А.В., Сагалов С.С. Вихретоковые методы контроля в реакторном материаловедении. Димитровград, ОАО «ГНЦ НИИАР», 2010.
4. Перехожев В.И., Синельников Л.П., Тимохин А.Н. и др. Равномерная и «нодульная» коррозия сплавов циркония в условиях эксплуатации. — Металловедение и термическая обработка металлов, 2003, № 10, с. 26—31.
5. Светухин В.В., Новоселов А.Е., Кобылянский Г.П. и др. Моделирование кинетики коррозии циркониевых оболочек твэлов реактора ВВЭР-1000. — В сб.: Моделирование поведения под облучением реакторных материалов. Ульяновск, УлГУ, 2007.
6. Петухов Б.С., Генин Л.Г., Ковалев С.А. Теплообмен в ядерных энергетических установках. М.: Энергоатомиздат, 1986.
7. Архипов В.В., Ермаков В.А. Радиоллиз теплоносителя на АЭС с РБМК и условия применения водородного водно-химического режима. — В сб.: Межд. научно-техн. сов. «Водно-химический режим АЭС». Смоленская АЭС, 13—17 октября 2003 г. М., 2005, с. 312—329.
8. Загребяев А.М., Костанбаев С.В., Овсянникова Н.В. и др. Контроль расхода в технологическом канале РБМК на основе информации об активности теплоносителя. — Атомная энергия, 2010, т. 108, вып. 2, с. 82—86.
9. Alexeev N., Behrens D., Davydova G. e.a. The Monte Carlo codes MCNP and MCU for RBMK criticality calculations. — Nucl. Engng Des., 1998, v. 183, p. 287—302.
10. Гольцев А.О., Давыдова Г.Б., Давиденко В.Д. Влияние депрессии потока нейтронов в ячейке РБМК на величину максимальной и средней температуры топлива. — Изв. Томского политехнического ун-та, 2009, т. 134, № 4, с. 5—7.
11. Кириллов П.Л., Юрьев Ю.С., Бобков В.П. Справочник по теплогидравлическим расчетам (ядерные реакторы, теплообменники, парогенераторы). М.: Энергоатомиздат, 1990.
12. Лысиков Б.В., Прозоров В.К. Термометрия и расходомерия ядерных реакторов. М.: Энергоатомиздат, 1985.

Поступила в Редакцию 14.03.17

УДК 621.039.53

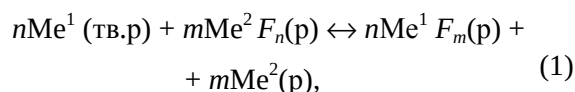
КОРРОЗИОННАЯ И МЕХАНИЧЕСКАЯ СТОЙКОСТЬ НИКЕЛЕВЫХ СПЛАВОВ В ЖИДКОСОЛЕВЫХ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРАХ

Суренков А.И., Игнатъев В.В., Абакин С.С., Конаков С.А., Углов В.С.
(НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Конструкционным материалом жидкосолевого ядерного реактора MSRE (США) был сплав на основе никеля хастеллой-н. Реакторными испытаниями были установлены его охрупчивание под действием гелия, образующегося из $^{10}\text{В}$ и никеля по ядерным реакциям, и диффузия продукта деления теллура в сплав по границам зерен, вызывающая межкристаллитную коррозию. Разработка новых проектов жидкосолевыми ядерными реакторами с активной зоной полостного типа потребовала создания сплавов повышенной жаростойкости, радиационной и коррозионно-механической стойкости для работы при температуре до 750 °С [1]. Состав таких сплавов приведен в табл. 1.

Коррозия конструкционных материалов и контроль окислительно-восстановительного состояния расплавов солей фторидов металлов. Фториды металлов жидкосолевыми композиций образуют более прочные соединения, чем фториды металлов, входящих в конструкционные сплавы. По убыванию энергии образования фторидов металлы располагаются в ряд $\text{Li} > \text{Na} > \text{K} > \text{Be} > \text{Th} > \text{U}^{3+} > \text{Zr} > \text{U}^{4+} > \text{Al} >$

$\text{V} > \text{Ti} > \text{Mn} > \text{Cr} > \text{Nb} > \text{Fe} > \text{Co} > \text{Ni} > \text{Mo} > \text{W}$ [1, 2]. Поэтому образующие расплав фториды не вступают в реакцию окисления металлов, содержащихся в конструкционном сплаве. Если в солевом расплаве есть примеси VF_2 , TiF_2 , CrF_2 , FeF_2 , NiF_2 , HF , протекают реакции типа



где $\text{Me}^1(\text{тв.р})$ — металлы, входящие в конструкционный сплав; $\text{Me}^2(\text{р})$ — металл, фторид которого присутствует в расплаве как примесь; n , m — число молекул фторидов металлов или атомов металлов и фтора, участвующих в реакции; $\text{Me}^2\text{F}_n(\text{р})$, $\text{Me}^1\text{F}_m(\text{р})$ — фториды металлов. Для некоторых металлов, входящих в сплав в качестве легирующей добавки (Al , Ti , V , Nb), термодинамическая активность в никелевых сплавах или растворимость их фторидов низкая. Поэтому, несмотря на большое сродство указанных металлов к фтору, реакция (1) с их участием почти не протекает, реализуются реакции восстановления фторидов железа, никеля и фтористого водорода хромом, обладающим высо-