

ПОГЛОЩАЮЩИЕ МАТЕРИАЛЫ И СТЕРЖНИ СУЗ ИННОВАЦИОННЫХ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

В.Д. Рисованный, А.В. Захаров, Е.П. Клочков
ОАО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград



Карбид бора различного обогащения по изотопу бор-10 остается основным поглощающим материалом для стержней аварийной защиты ядерных реакторов на быстрых нейтронах. Перспективным направлением является использование стержней с кольцевыми образцами карбида бора большого диаметра. Для увеличения ресурса органов регулирования быстрых реакторов предлагаются поглощающие материалы на основе европия и гидроксида гафния.

Ключевые слова: выгорание, карбид бора, поглощающий материал, ресурс, стержень СУЗ.

Key words: burnup, boron carbide, absorbing material, lifetime, control rod.

ВВЕДЕНИЕ

Особенностью ядерных реакторов на быстрых нейтронах является наличие сравнительно небольшого количества стержней управления и защиты (СУЗ). Имеются большие ограничения использования в них поглощающих материалов из-за предъявляемого основного требования по высокому сечению поглощения нейтронов в области больших энергий.

Среди известных поглощающих материалов наилучшие ядерные свойства имеет изотоп бор-10 (^{10}B), у которого сечение поглощения нейтронов с энергией более 1 МэВ превышает 2 барна ($2 \cdot 10^{-28} \text{ м}^2$). Поэтому наиболее широко в стержнях СУЗ отечественных и зарубежных реакторов на быстрых нейтронах применяется карбид бора от 20 до 92% обогащения по изотопу бор-10.

Накоплен большой опыт по проектированию и эксплуатации самых различных конструкций стержней СУЗ с карбидом бора в реакторах БН-600, БН-350, БОР-60 и БР-5. Проведенные исследования позволили значительно увеличить их ресурсные характеристики. Так для стержней аварийной защиты с рефабрицированным карбидом бора реактора БН-600 за последние 10 лет ресурс увеличен с 330 до 745 эфф.сут. Использование в них одного вместо двух поглощающих звеньев, соединенных между собой по торцам шарнирным соединением, и таблеток карбида бора с повышенной плотностью (более 95% от теоретической) позволило более, чем на 8% повысить физическую эффективность.

Технологии замкнутого цикла в использовании карбида бора высокого обогащения по изотопу бор-10 необходимо использовать при создании инновационных ядерных реакторов.

© **В.Д. Рисованный, А.В. Захаров, Е.П. Клочков, 2011**

На следующем этапе предлагается переход на конструкцию стержня СУЗ с одним кольцевым поглощающим элементом из карбида бора с внешним диаметром около 70 мм и толщиной стенки от 10 до 25 мм в зависимости от требуемой физической эффективности. Ранее стержни СУЗ с кольцевыми образцами карбида бора прошли успешные испытания в реакторах БН-350 и БОР-60.

Следует ожидать, что из-за больших радиационных повреждений карбида бора, прежде всего его набухания до 30–40% при выгорании 40–50% ^{10}B , максимальные ресурсные характеристики стержней СУЗ в реакторах БН-600 и БН-800 не будут превышать 900–1000 эфф.сут. Для инновационных ядерных реакторов на быстрых нейтронах нового поколения, возможно, потребуются более радиационно-стойкие нераспухающие поглощающие материалы с высокой физической эффективностью. Таким материалом является гидрид гафния (HfH_x , где $x=1,3\text{--}1,5$). Физическая эффективность этого материала в исходном состоянии немногим уступает карбиду бора 80%-го обогащения по изотопу бор-10 и за 10 лет эксплуатации снижается не более, чем на 8–10% (у B_4C снижение на 20–30% из-за выгорания изотопа бор-10). Гидрид гафния планируется использовать в стержнях СУЗ проектируемого в Японии реактора на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем четвертого поколения JSFR, серийное строительство которых ожидается в 2030–2040 гг.

Предлагается также вернуться к использованию в стержнях СУЗ ядерных реакторов на быстрых нейтронах поглощающих материалов на основе европия.

Для органов регулирования ядерных реакторов с тяжелым теплоносителем (свинец, свинец-висмут) предлагается поглощающая композиция Hf^{10}B_2 с физической плотностью более 10 г/см³ и двойным поглотителем на основе ^{10}B и Hf.

Для ядерных реакторов на тепловых нейтронах разработана новая поглощающая композиция, гафнат диспрозия, по своим эксплуатационным характеристикам не имеющая мировых аналогов.

В работе представлены некоторые результаты проведенных исследований поглощающих материалов и стержней СУЗ для действующих и проектируемых инновационных реакторов.

ПОГЛОЩАЮЩИЕ МАТЕРИАЛЫ И КОНСТРУКЦИИ СТЕРЖНЕЙ СУЗ ДЛЯ РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

Несмотря на низкую радиационную стойкость всех α -поглотителей на основе изотопа бор-10, они, безусловно, будут применяться в стержнях СУЗ инновационных ядерных реакторов на быстрых нейтронах благодаря прежде всего их уникальным ядерным свойствам – эффективно поглощать нейтроны высоких энергий (рис. 1).

В реакторе БОР-60 было исследовано более 200 различных α - и γ -поглотителей. В частности, было показано, что таблетки карбида бора застехиометрического состава B_xC (где $x = 6\text{--}10$) имеют аналогичную B_4C радиационную стойкость (рис. 2), но при этом их физическая эффективность на 6–8% выше благодаря более высокой ядерной плотности изотопа бор-10. В НИИАР изготавливаются таблетки B_4C с плотностью выше 95% от теоретической методом «горячего» прессования с более высокой радиационной стойкостью, которые характеризуются меньшей механической прочностью и при набухании не деформируют оболочку (рис. 3).

Наилучшие результаты «горячего» прессования получены при использовании ультрадисперсного порошка B_4C с размером частиц менее 80 нм.

Перспективным конструкторским решением является использование кольцевых поглощающих элементов из карбида бора, что позволяет существенно (на 5–

15%), повысить их физическую эффективность или использовать B_4C с меньшим обогащением по изотопу бор-10 (рис. 4). Работоспособность таких изделий, как уже говорилось выше, также подтверждена в реакторе БОР-60, а позднее в БН-350.

При использовании стержней СУЗ с карбидом бора высокого обогащения по изотопу бор-10, особенно в режиме аварийной защиты, среднее выгорание изотопа бор-10 редко превышает 1–2% для реактора БН-600 (энергетических реакторов большой мощности). Стержни выгружаются из ядерного реактора из-за низкой радиационной стойкости конструкционных материалов. При этом допустимое выгорание, которое не приводит к резкому снижению физической эффективности изделий, составляет 20% изотопа бор-10. Это позволяет неоднократно использовать обо-

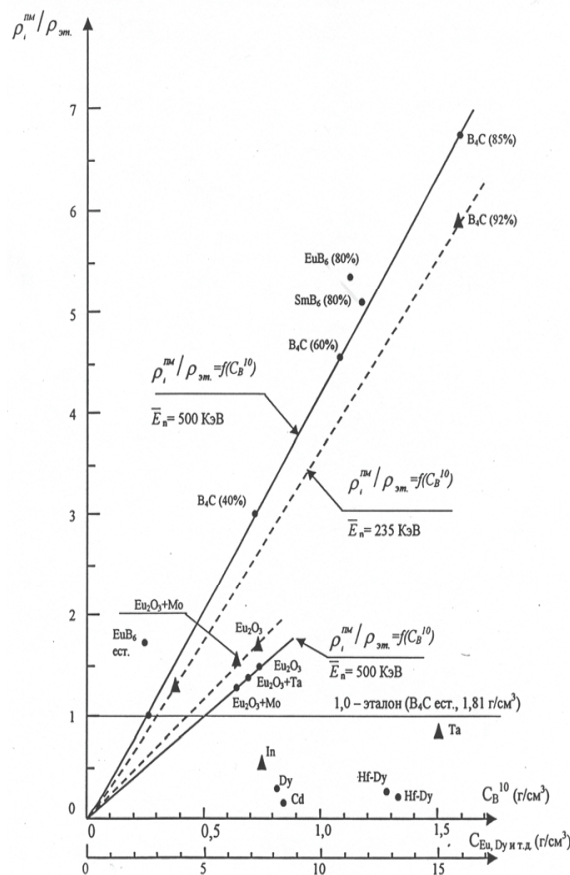


Рис. 1. Физическая эффективность поглощающих материалов в быстром спектре нейтронов

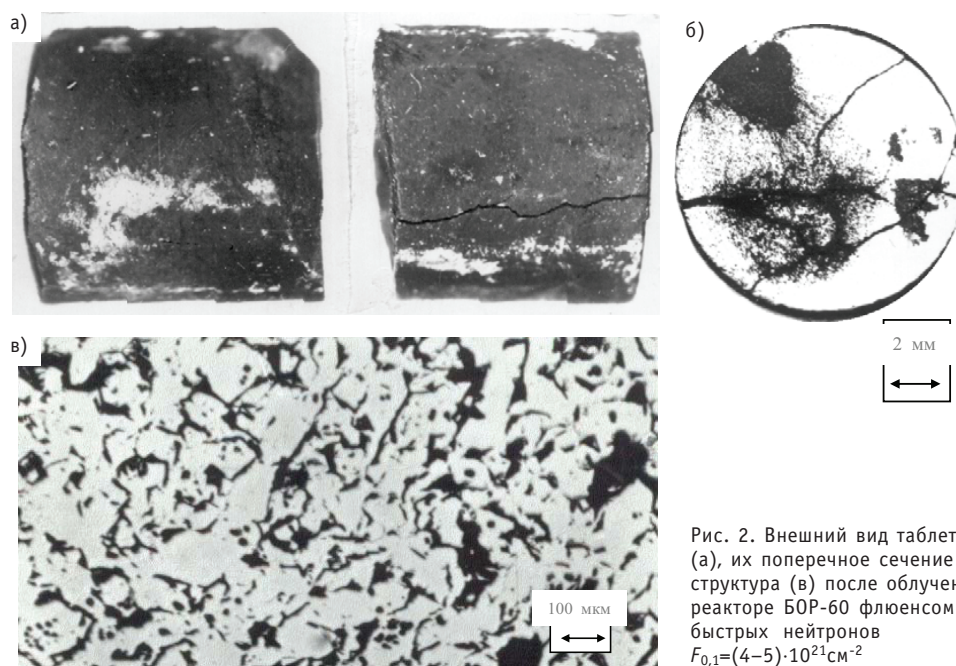


Рис. 2. Внешний вид таблеток $B_{10}C$ (а), их поперечное сечение (б) и структура (в) после облучения в реакторе БОР-60 флюенсом быстрых нейтронов $F_{0,1} = (4-5) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$



Рис. 3. Внешний вид таблеток B_4C после облучения в реакторе BOR-60 до 17% выгорания изотопа бор-10: а) – штатные таблетки; б) – рефабрицированные таблетки с меньшей механической прочностью

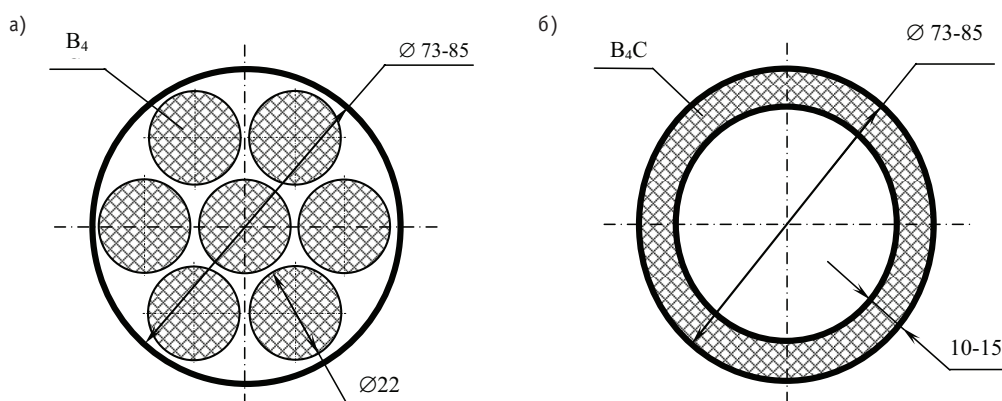


Рис. 4. Схема поперечного сечения конструкции штатного (а) и нового стержня (б) СУЗ с B_4C для инновационных ядерных реакторов

гащенный карбид бора в стержнях СУЗ после его извлечения из отработавших изделий. И такие технологии были разработаны в нашем институте в 1990-е гг. Схема впервые в мире на практике реализованного для реактора BOR-60 замкнутого цикла в использовании карбида бора высокого обогащения по изотопу бор-10 представлена на рис. 5. По этой технологии с 1996 г. изготавливаются стержни СУЗ для реактора BOR-60.

С использованием отработавших в реакторе BOR-60 стержней СУЗ (переработано более 40 изделий) были решены научные и технические задачи по радиохимической переработке карбида бора. С 2002 г. данная технология применяется и для стержней АЗ реактора БН-600 и, безусловно, будет востребована для инновационных ядерных реакторов на быстрых нейтронах следующего поколения. Актуальна она и для кластерных сборок PWR и других реакторов на тепловых нейтронах с МОХ-топливом, в которых планируется использование B_4C 60%-го обогащения по изотопу бор-10.

Для органов регулирования ядерных реакторов с тяжелым теплоносителем (свинец, свинец-висмут) предлагается поглощающая композиция $Hf^{10}B_2$ с физической плотностью более 10 г/см^3 и двойным поглотителем – ^{10}B и Hf .

Впервые в конце 1980-х гг. в реакторе BOR-60 были испытаны образцы гидрида гафния ($HfH_{1,65}$) и показана их высокая радиационная стойкость. После публи-

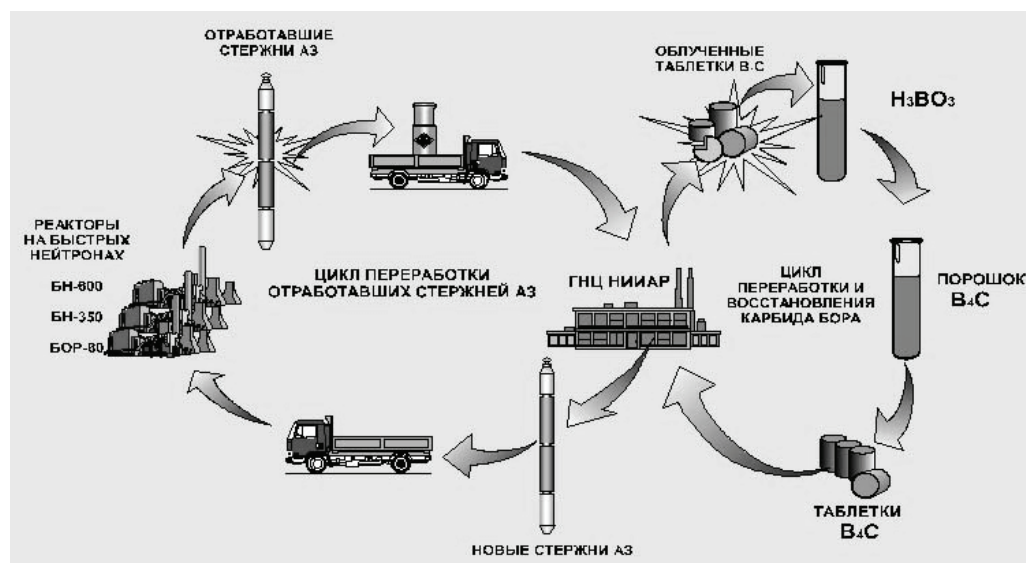


Рис. 5. Схема замкнутого цикла в использовании карбида бора высокого обогащения по изотопу бор-10

кации этих данных специалисты Японии в начале 2000-х годов показали, что $\text{HfH}_{1,0}$ по физической эффективности практически соответствует B_4C 80%-го обогащения по изотопу бор-10, но в отличие от последнего длительное время сохраняет высокую физическую эффективность (рис. 6). С 2010 г. планируется облучение в реакторе БОР-60 макетов поглощающих элементов с гидридом гафния до высоких повреждающих доз для обоснования их работоспособности в течение 10 лет в данном реакторе. Эта новая концепция, схематично показанная на рис. 7, является перспективной и для отечественных инновационных ядерных реакторов.

В России накоплен уникальный опыт по эксплуатации органов регулирования на основе европия. Оксид европия распухает не более, чем на 1% (рис. 8) при

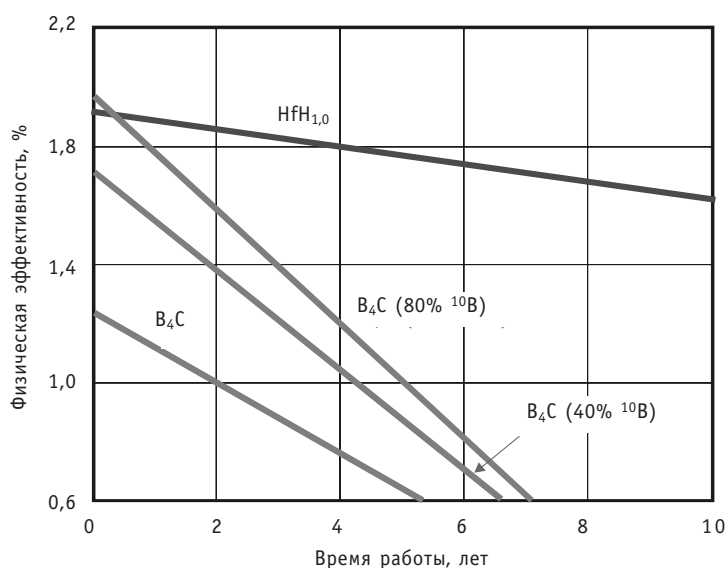


Рис. 6. Зависимость физической эффективности $\text{HfH}_{1,0}$ и B_4C различного обогащения по изотопу бор-10 в зависимости от времени эксплуатации в ядерном реакторе на быстрых нейтронах

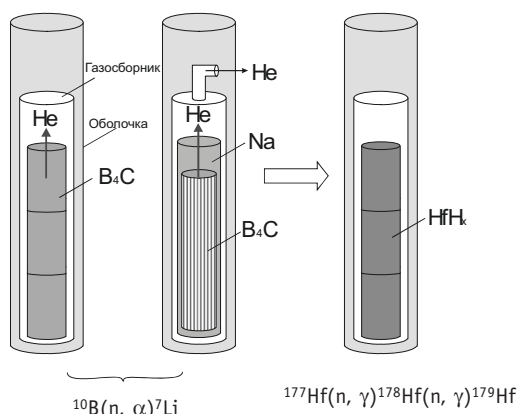


Рис. 7. Концепция использования поглощающих материалов в инновационных ядерных реакторах Японии

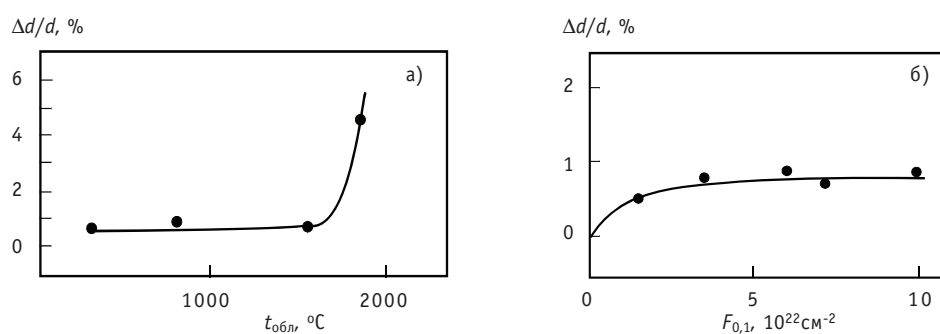


Рис. 8. Зависимость изменения диаметра таблеток Eu_2O_3 от флюенса быстрых нейтронов (а) и температуры облучения (б)

условии, если температура облучения не превышает 1600–1700°C, таблетки сохраняют целостность и градиент температур ниже 45°C/мм. При большем градиенте происходит растрескивание и фрагментация таблеток (рис. 9).

Перспективными остаются конструкции стержней СУЗ «ловушечного» типа с использованием кольцевого поглощающего элемента из Eu_2O_3 и замедляющего элемента с гидридом циркония (ZrH_x), расположенного по центру поглощающего элемента. Такие изделия успешно более двух лет отработали в реакторе БОР-60.

Основная проблема связана с высокой наведенной активностью радионуклидов европия (до 60 Ки/г) и длительным периодом полураспада (8–13 лет). Отказ

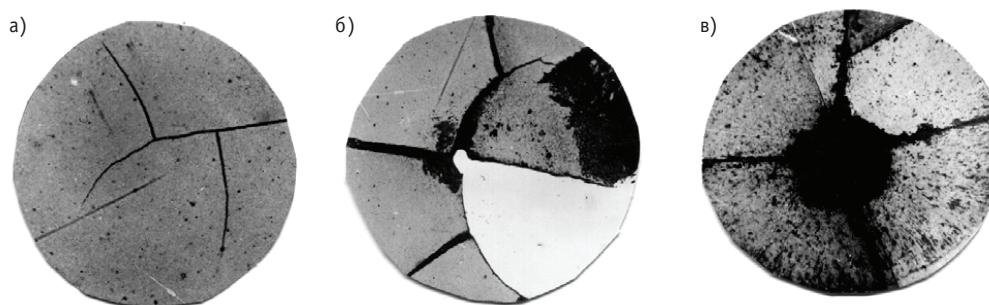


Рис. 9. Поперечные сечения таблеток Eu_2O_3 после реакторного облучения: а) $F_{0,1}=1,05 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-2}$; $t=630\text{--}890^\circ\text{C}$; б) $F_{0,1}=1,4 \cdot 10^{21} \text{cm}^{-2}$; $t=920\text{--}1420^\circ\text{C}$; в) $F_{0,1}=2,72 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-2}$; $t=1100\text{--}1850^\circ\text{C}$

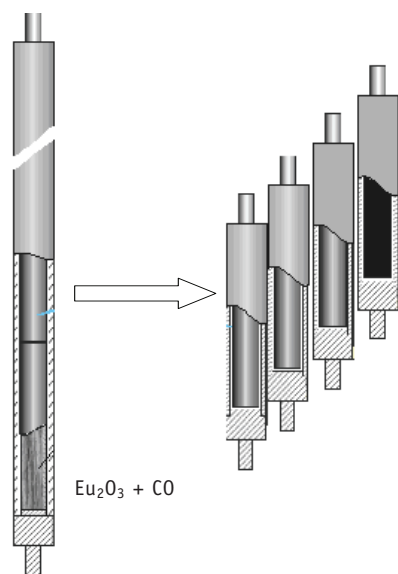


Рис. 10. Двухцелевые стержни СУЗ с поглощающими вкладышами на основе европия

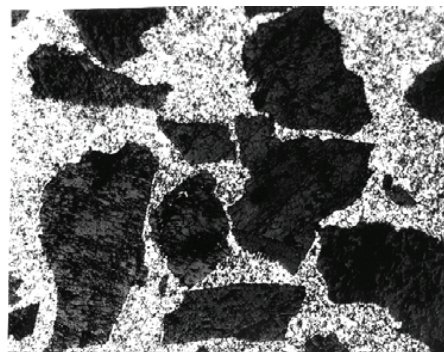


Рис. 11. Структура $\text{Eu}_2\text{O}_3 + \text{Co}$ после облучения в реакторе БОР-60:
 $F_{0,1} = 2,1 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$; $t = 740\text{--}1100^\circ\text{C}$

в 1980–1990-е гг. от использования поглощающих материалов на основе европия во многом был связан с проблемами по обращению с отработавшими изделиями.

В будущем, перспективными могут быть конструкции двухцелевых стержней СУЗ. После эксплуатации в ядерных реакторах поглощающие

сердечники с европием переампулируются во вторые герметичные оболочки и будут использоваться в качестве гамма-источников (рис. 10).

Перспективной для этих конструкций является поглощающая композиция $\text{Eu}_2\text{O}_3 + \text{Co}$, которая также показала высокую радиационную стойкость после испытаний в реакторе БОР-60 (рис. 11).

Матрица из кобальта не только повышает на порядок температуропроводность материала (с 1–2 Вт·м/к у Eu_2O_3 до 30–50 Вт·м/к у $\text{Eu}_2\text{O}_3 + \text{Co}$), но и служит своеобразным дополнительным защитным барьером, предотвращающим контакт радионуклидов европия с атмосферой. Кроме того, кобальт также активизируется и вносит дополнительный вклад в общую активность сердечника.

ПЕРСПЕКТИВНЫЕ ПОГЛОЩАЮЩИЕ МАТЕРИАЛЫ ДЛЯ ОРГАНОВ РЕГУЛИРОВАНИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ

В реакторе БОР-60 выполнен большой цикл работ по испытаниям поглощающих материалов и макетов органов регулирования для ядерных реакторов (рис. 12).

После облучения в реакторе БОР-60 часть изделий исследовали в «горячих» камерах, а остальные продолжали облучать в реакторах СМ или МИР. Это позволяет набирать необходимую повреждаемую дозу от суммарного воздействия быстрых и тепловых нейтронов за сравнительно короткое время. Радиационная повреждаемость целого класса n, γ -поглотителей на основе редкоземельных элементов зависит от флюенса быстрых нейтронов, и облучение в быстром спектре нейтронов позволяет надежно обосновать их эксплуатационные свойства. Например, первые испытания гафната диспрозия ($\text{nDy}_2\text{O}_3\text{mHfO}_2$) в конце 1990-х гг. были проведены в реакторе БОР-60 (рис. 13).

Дальнейшие исследования показали, что данный материал с разупорядоченной флюоритной кристаллической структурой не имеет мировых аналогов. Он практически не чувствителен к реакторному облучению, не подвержен распуханию, имеет высокую физическую эффективность и обеспечивает время эксплуатации

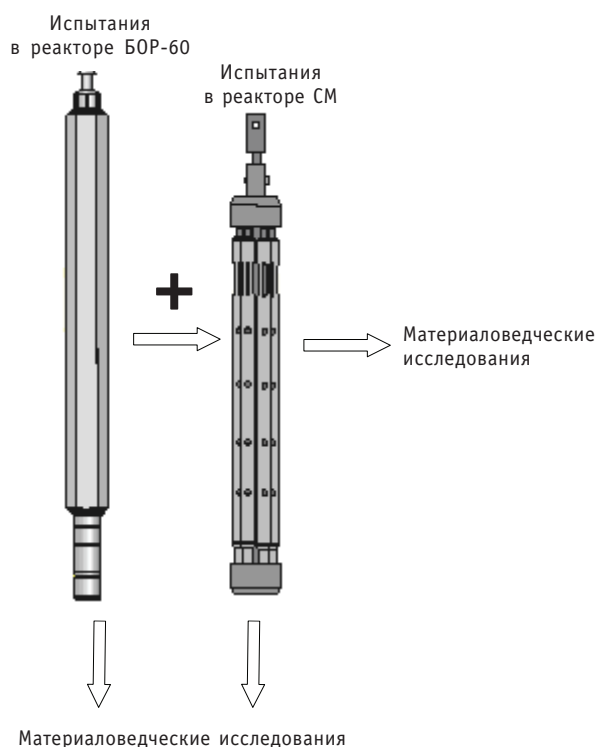


Рис. 12. Методика ускоренных реакторных испытаний поглощающих материалов и макетов органов регулирования

ПЭЛ ПС СУЗ ВВЭР-1000 в течение 25–30-ти лет. С этим поглощающим материалом мы связываем будущее развитие органов регулирования инновационных ядерных реакторов на тепловых и промежуточных нейтронах следующего поколения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Карбид бора различного обогащения по изотопу бор-10 остается основным поглощающим материалом для стержней аварийной защиты ядерных реакторов на быстрых нейтронах. Перспективным направлением является использование стержней с кольцевыми образцами карбида бора большого диаметра.

Время эксплуатации органов регулирования с карбидом бора ограничено 50%-ым выгоранием по изотопу бор-10 и для ре-

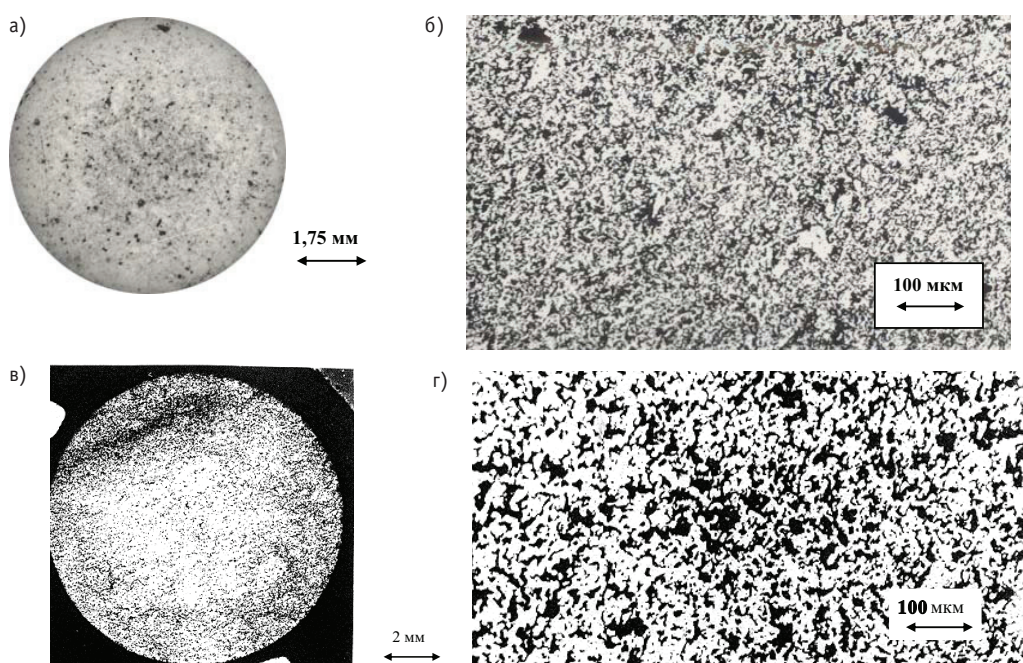


Рис. 13. Поперечные сечения (а, в) и структура (б, г) гафната диспрозия до (а,б) и после облучения в реакторе БОР-60 (в, г) флюенсом быстрых нейтронов $F_{0,1} = 10^{21} \text{ см}^{-2}$

акторов на быстрых нейтронах не превышает 1000–1200 эфф.сут.

Для увеличения ресурса органов регулирования быстрых реакторов предлагаются поглощающие материалы на основе европия и гидрида гафния.

Использование гафната диспрозия позволяет увеличить время работы органов регулирования в ядерных реакторах на тепловых нейтронах до 25–30 лет.

Поступила в редакцию 14.10.2010

УДК 621.039.53

Structural Materials for Fuel Cladding and Sub-Assembly Wrappers of the BN-600 Reactor \N.M. Mitrofanova, A.V. Tselishchev, V.S. Ageev, Yu.P. Budanov, A.G. Ioltukhovskiy, M.V. Leonteva-Smirnova, F.G. Reshetnikov, Yu. K. Bibilashvili, I.A. Shkabura, Yu.A. Ivanov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 13 pages, 5 tables, 6 illustrations. – References, 16 titles.

The results of research into materials such as wrapper and cladding steels of various grades for the BN-600 fuel sub-assemblies are presented. Different steel types are compared in terms of the operating reliability. The prospective steel patterns for the commercial BN-1200 reactor are determined.

УДК 621.039.54

Change in the Physical-Mechanical Properties of the Fuel Cladding Made of the EK-164 and ChS-68 Steels after Their Operation in the BN-600 Reactor after Four Cycles \A.M. Mosin, M.V. Evseev, I.A. Portnykh, E.N. Shcherbakov, V.S. Shikhalev, A.V. Kozlov, N.M. Mitrofanova; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 7 pages, 1 table, 8 illustrations.

The results of research into the fuel cladding made of the ChS68 and EK64 austenitic steels after operation in the BN-600 reactor are presented. The change in diameters, the swelling, the mechanical properties, the electric resistance and the Young modulus of the cladding materials along the fuel pins have been determined.

УДК 621.039.54

Comparative Studies of the Porosity Formed in the Material of the Fuel Cladding Made of ChS68 steel and Manufactured following the Pervouralsk Novotrubny Works Technology and Advanced Machine-building Works Technology after Operation in the BN-600 Reactor \I.A. Portnykh, A.V. Kozlov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 9 pages, 8 illustrations. – References, 4 titles.

It is shown that the improvement of the technology of the manufacture of the fuel cladding made of the ChS68 cold-worked steel has led to the reduction in the spread of the porosity characteristics and therefore in the cladding swelling values. At the same time the spread of the characteristics of porosity and swelling of the cladding manufactured by the Machine-building Works remains significant which requires further improvement of the fuel cladding manufacture technology.

УДК 621.039.54

Absorbing Materials and Control Rods of the Innovation Nuclear Reactors \V.D. Risovany, A.V. Zakharov, E.P. Klochkov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 9 pages, 13 illustrations.

Boron carbide differently enriched in boron-10 isotope remains to be a main absorbing material for the safety rods of the fast reactors. The promising line is a utilization of the rods with annular shapes of boron carbide of a large diameter. For extension of the fast reactor control rod lifetime the absorbing materials based on europium and hafnium hydride are proposed.

УДК 621.039.54

Development of the BN-600 Reactor Safety Rods based on Refabricated Boron Carbide with a Lifetime of 745 efpd \V.D. Risovany, A.V. Zakharov, E.P. Klochkov, V.V. Maltsev, A.I. Karpenko, E.A. Kozmanov, A.M. Tuchkov, B.A. Vasilev, O.V. Mishin, Yu.K. Alexandrov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2011. – 11 pages, 2 tables, 7 illustrations.

On the basis of the developed technique of the refabrication of enriched boron carbide from the spent safety rods the closed cycle ensuring its recycling as a kernel of the absorbers has been created. The specialized section for the control rod manufacture as complying with all the necessary requirements imposed on the standard safety rod manufacture has been created.