

СРАВНИТЕЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПОРИСТОСТИ, СФОРМИРОВАВШЕЙСЯ В МАТЕРИАЛЕ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ ИЗ СТАЛИ ЧС68, ИЗГОТОВЛЕННЫХ ПО ТЕХНОЛОГИИ ПНТЗ И УСОВЕРШЕНСТВОВАННОЙ ТЕХНОЛОГИИ МСЗ, ПОСЛЕ ЭКСПЛУАТАЦИИ В РЕАКТОРЕ БН-600

И.А. Портных, А.В. Козлов

ОАО «Институт реакторных материалов», г. Заречный



Проведены исследования характеристик радиационной пористости в оболочках твэлов из стали ЧС68 х.д., изготовленных на ПНТЗ и на МСЗ по усовершенствованной технологии, после облучения в реакторе БН-600 в течение 560 эфф.сут (четыре микрокампании) до различных повреждающих доз при разных температурах. Определены зависимости величин распухания от скорости смещений в различных температурных диапазонах. Найдены зависимости средних размеров и концентраций пор от скорости смещений в исследованных температурных диапазонах облучения. Показано, что усовершенствование технологии производства оболочек твэлов из стали ЧС68 привело к уменьшению разброса характеристик пористости и значений распухания.

Ключевые слова: облучение, реактор БН-600, оболочка твэла, сталь ЧС68, распухание, микроструктура, радиационная пористость, скорость смещений.

Key words: irradiation, BN-600 reactor, fuel pin cladding, ChS68 steel, swelling, microstructure, radiation porosity, displacement rate.

ВВЕДЕНИЕ

При эксплуатации твэлов с оболочками производства ПНТЗ наблюдался разброс в величине распухания твэлов одной ТВС в 2–4 раза. Причинами такого неодинакового поведения оболочек могли стать неоднородность химического состава в слитке; неомогенность распределения легирующих примесей (в частности, примесей внедрения) в материале оболочек при этапах трубного передела (в частности, из-за разброса температур отжигов на промежуточных этапах передела). Это привело ВНИИНМ и МСЗ к необходимости разработки усовершенствованной технологии изготовления оболочек твэлов из стали ЧС68.

Целью работы являлось получение и анализ характеристик пористости в материалах оболочек, изготовленных по старой технологии на ПНТЗ и усовершенство-

ванной технологии на МСЗ, после эксплуатации твэлов в реакторе БН-600 в различных дозово-температурных условиях и сравнение полученных характеристик.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Исследовались образцы оболочек из стали ЧС68 х.д., изготовленных на заводе ПНТЗ и по усовершенствованной технологии на заводе МСЗ (ЧС68-ИД х.д.) [1], после облучения в реакторе БН-600 в течение 560 эфф.сут (четыре микрокампании) до различных повреждающих доз при разных температурах. Основные отличия усовершенствованной технологии от предыдущей:

- регламентирование бора на уровне 20–50 ppm (вместо 0–50 ppm);
- введение дополнительного гомогенизирующего отжига на промежуточном размере $\varnothing 42$ мм;
- задание финальной холодной деформации способом короткооправочного волочения (вместо холодной прокатки).

В качестве объекта исследований брались образцы семи оболочек твэлов из стали ЧС68 х.д., после эксплуатации в составе пяти различных ТВС, и семи оболочек твэлов из стали ЧС68-ИД х.д., после эксплуатации в составе двух различных ТВС. Все выбранные твэлы отработали в реакторе одинаковое количество времени (560 эфф.сут), но набрали разную повреждающую дозу, следовательно, они отличаются скоростью смещений (набора дозы).

Микроструктурные исследования проводили методом просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) на микроскопе JEM-2000EX при ускоряющем напряжении 160 кВ. Строились гистограммы распределения пор по размерам, из которых находились средние размеры и концентрации пор [2–4]. Распухание исследованных образцов определялось по данным ПЭМ и методом гидростатического взвешивания.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ АНАЛИЗ

Из всех четырнадцати оболочек твэлов выбирались образцы, соответствующие трем температурным диапазонам облучения: низкотемпературному (420–430°C), среднетемпературному (455–490°C) и высокотемпературному (510–535°C).

Определялось распухание образцов, соответствующих различным температурным диапазонам. В низкотемпературном диапазоне 420–430°C определялись величины распухания семи образцов из оболочек производства МСЗ и одного образца из оболочки производства ПНТЗ, отличающиеся скоростями смещений от $0,81 \times 10^{-6}$ до $0,99 \times 10^{-6}$ сна/с. Величина распухания при этом изменяется от 0,8 до 2,3% (в три раза) для различных образцов и немного увеличивается с ростом скорости смещений. Причем отличий в величине распухания у образцов из оболочек производства МСЗ и образца из оболочки производства ПНТЗ не наблюдается.

В среднетемпературном диапазоне 455–490°C определялись величины распухания семи образцов из оболочек производства МСЗ и семи образцов из оболочек производства ПНТЗ, отличающиеся скоростями смещений от $1,14 \times 10^{-6}$ до $1,48 \times 10^{-6}$ сна/с. До скоростей смещений $1,35 \times 10^{-6}$ сна/с величина распухания изменяется от 1,8 до 4,7% (в 2,7 раза) для различных образцов и слабо увеличивается с ростом скорости смещений. Отличий в величине у образцов из оболочек производства МСЗ и образцов из оболочек производства ПНТЗ не наблюдается в этом диапазоне скоростей смещений. При скоростях смещений выше $1,35 \times 10^{-6}$ сна/с величина распухания у образцов из оболочек производства ПНТЗ резко возрастает и наблюдается большое отличие с 6,6 до 12,3% у образцов с практически одинаковыми условиями облучения.

В высокотемпературном диапазоне 510–535°C определялись величины распухания семи образцов из оболочек производства МСЗ и шести образцов из оболочек производства ПНТЗ отличающиеся скоростями смещений от $1,03 \times 10^{-6}$ до $1,60 \times 10^{-6}$ сна/с. У образцов из оболочек производства МСЗ величина распухания увеличивается от 0,6% при скорости смещений $1,03 \times 10^{-6}$ сна/с до 2,2% при скорости смещений $1,43 \times 10^{-6}$ сна/с. При скоростях смещений выше $1,4 \times 10^{-6}$ сна/с величина распухания не зависит от скорости смещений и изменяется в пределах $2,5 \pm 0,6\%$. Образцы из оболочек производства ПНТЗ показывают большой разброс величин распухания, так при скорости смещений порядка $1,35 \times 10^{-6}$ сна/с для различных образцов величина распухания отличается в 10 раз – от 0,8 до 8,3%, а при скорости смещений $1,6 \times 10^{-6}$ сна/с величина распухания отличается в 1,5 раза – от 8,9 до 13,5%. Следует отметить, что величина распухания у образцов из оболочек производства МСЗ существенно ниже, чем у образцов из оболочек производства ПНТЗ.

Для выявления того, с чем связаны такие отличия в распухании, методами электронной микроскопии определялись характеристики пористости всех приведенных образцов.

В низкотемпературном диапазоне поры распределены равномерно по объему образцов (рис. 1а), преимущественно они связаны с дислокациями и дислокационными петлями, а также с выделениями радиационно-индуцированной G-фазы (рис. 16). Наблюдаемые поры имеют размер 2–35 нм и концентрацию $\sim (3,8–6,2) \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$. Отличий в характеристиках пористости у образцов из оболочек производства МСЗ и образца из оболочки производства ПНТЗ не наблюдается. На рисунке 2 приведены средние размеры и концентрации пор в исследованных образцах; заполненные символы характеризуют значения образцов из оболочек производства МСЗ, а пустые – значения образца из оболочки производства ПНТЗ.

Видно, что средний размер пор в образцах из оболочек производства МСЗ растет с увеличением скорости смещений. Изменения концентрации пор демонстрируют случайный характер, несколько выходя за границы погрешности измерений (рис. 2). В качестве характеристики концентрации пор в образцах оболочек про-

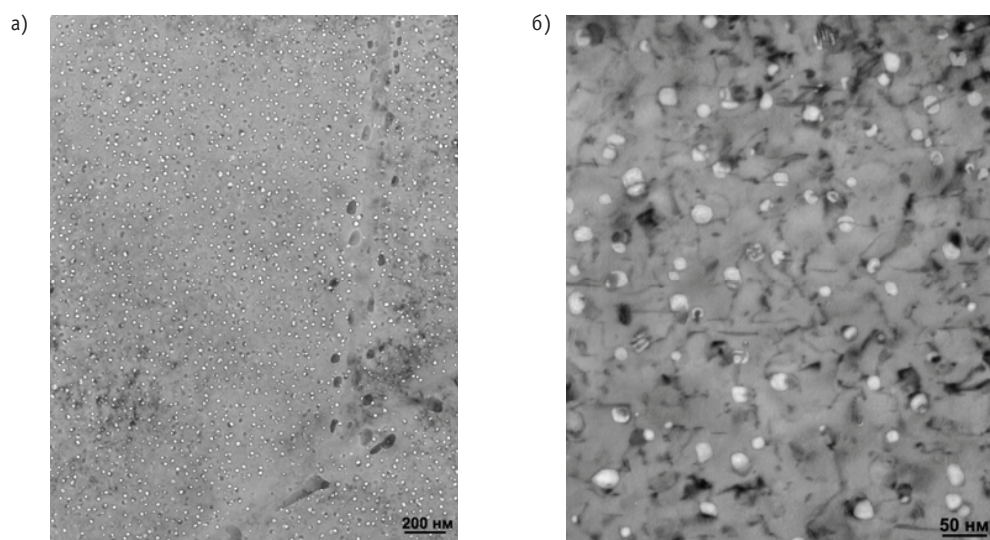


Рис. 1. Микроструктура, характерная для низкотемпературного диапазона облучения: а) – образец, облученный при температуре 425°C до дозы 46 сна; б) – образец, облученный при температуре 425°C до дозы 45 сна

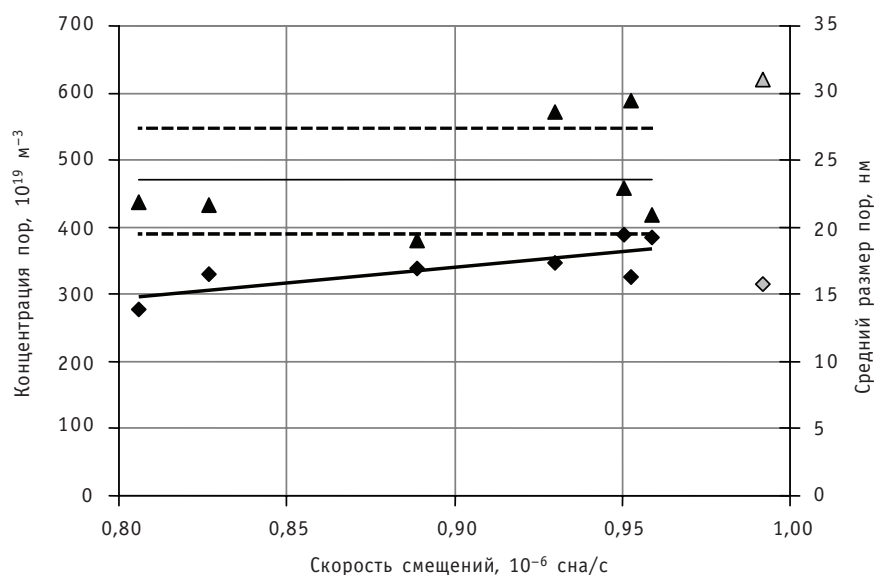


Рис. 2. Зависимости среднего размера и концентрации пор от скорости смещений для низкотемпературного (420–430°C) диапазона облучения (заполненные символы характеризуют значения образцов из оболочек производства МСЗ, а пустые – значения образца из оболочки производства ПНТЗ): \blacktriangle – концентрация; — — — среднее; \blacklozenge – средний размер

изводства МСЗ использовалось усредненное по температурному диапазону значение (сплошная линия) и среднее квадратичное отклонение (пунктирная линия). Значение концентрации пор в оболочке производства ПНТЗ несколько выше, чем в оболочках производства МСЗ.

В среднетемпературном диапазоне поры по объему некоторых образцов распределены преимущественно равномерно. В некоторых образцах наблюдаются свободные от пор области вдоль двойников (рис. 3), но есть области без пор, не связанные с какими-либо структурными особенностями. Неоднородность распределения увеличивается с ростом температуры облучения. Во всех исследованных образцах поры преимущественно связаны с дислокациями и дислокационными петлями, а также с выделениями *G*-фазы, причем с элементами дислокационной

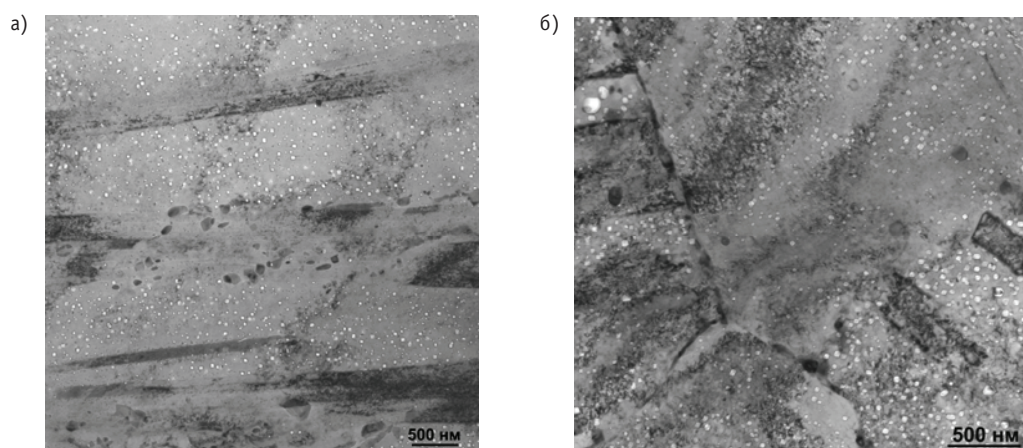


Рис. 3. Микроструктура, характерная для среднетемпературного диапазона облучения: а) – образец из оболочки производства МСЗ, облученный при температуре 465°C до дозы 61 сна; б) – образец из оболочки производства ПНТЗ, облученный при температуре 470°C до дозы 62 сна

структуры преимущественно связаны мелкие поры. Наблюдаемые поры в образцах из оболочек производства МСЗ, в основном, имеют размеры от 2 до 60 нм, но встречаются и более крупные – до 100 нм. Концентрация пор в различных образцах колеблется от $1,5 \times 10^{21}$ до $2,5 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$. Поры в образцах оболочек производства ПНТЗ имеют размеры от 2 до 70 нм, также встречаются более крупные до 100 нм, концентрация пор в различных образцах колеблется от $1,6 \times 10^{21}$ до $4,8 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$.

На рисунке 4а приведены средние размеры и концентрации пор в исследованных образцах из оболочек производства МСЗ, а на рис. 4б – из оболочек производства ПНТЗ. Видно, что средний размер пор растет с увеличением скорости сме-

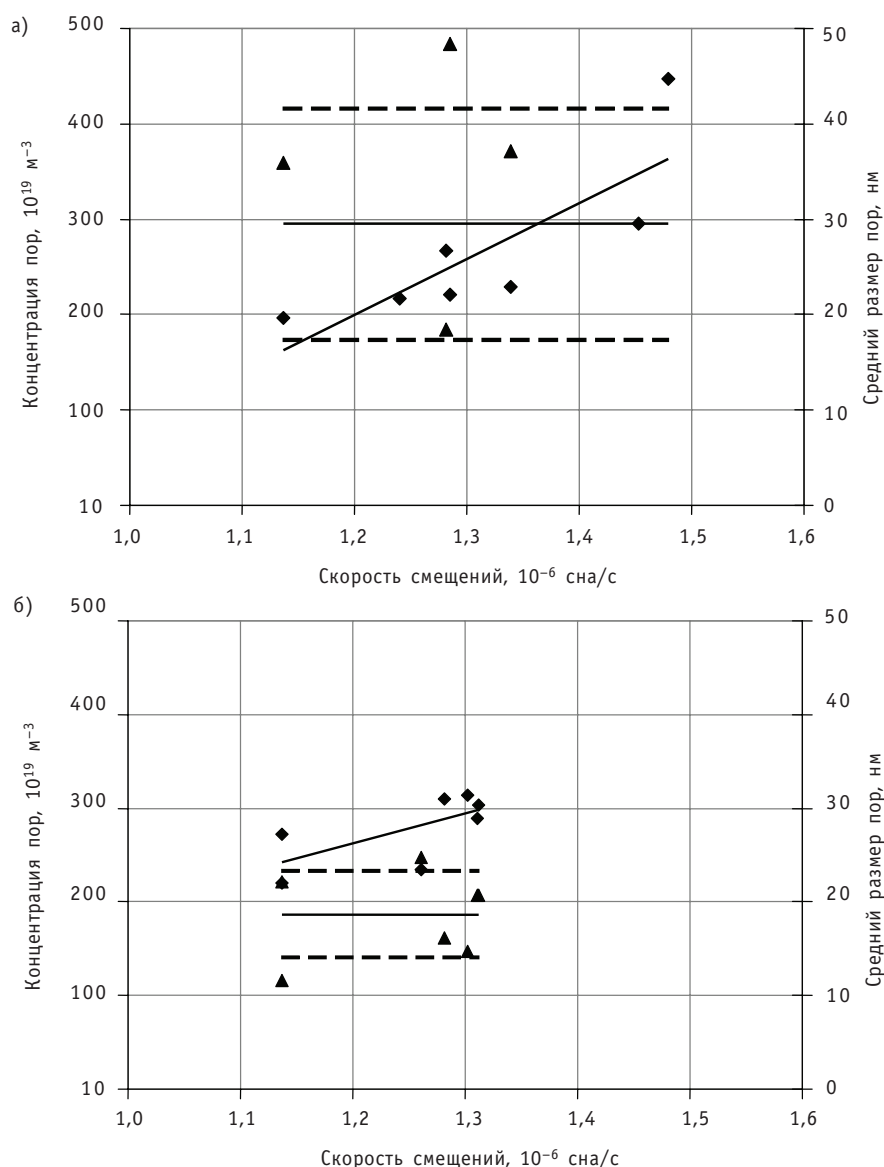


Рис. 4. Зависимости среднего размера и концентрации пор от скорости смещений для среднетемпературного (455–490°C) диапазона облучения: а) – значения для образцов из оболочек производства ПНТЗ; б) – значения для образцов из оболочек производства МСЗ; ▲ – концентрация; — – среднее; ◆ – средний размер

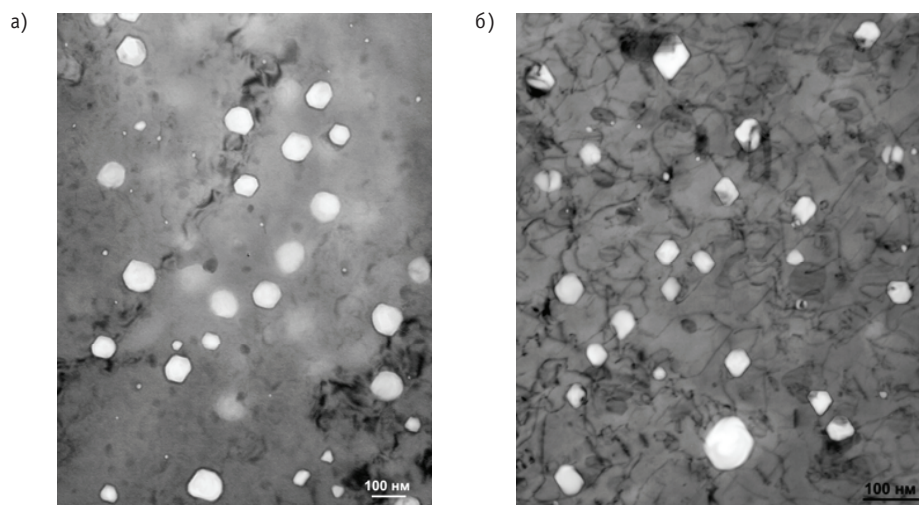


Рис. 5. Микроструктура, характерная для высокотемпературного диапазона облучения: а) – образец, облученный при температуре 530°C до дозы 71,4 сна; б) – образец, облученный при температуре 520°C до дозы 50 сна

щений, разброс значений в образцах из оболочек производства ПНТЗ больше, чем в образцах из оболочек производства МСЗ. Как и в предыдущем температурном диапазоне, использовались усредненные по температурному диапазону значения интегральной концентрации (сплошная линия) и их среднеквадратичные отклонения (пунктирная линия). Видно, что усредненное значение концентрации пор в образцах из оболочек производства ПНТЗ и его разброс существенно больше по сравнению со значениями для образцов из оболочек производства МСЗ.

При облучении в высокотемпературном диапазоне поры по объему во всех исследованных образцах из оболочек производства ПНТЗ и производства МСЗ, распределены неравномерно, наблюдаются как области, занятые порами, так и области без пор, причем наличие этих областей не связано с какими-либо структурными особенностями. Как и в предыдущих температурных диапазонах, поры преимущественно связаны с элементами дислокационной структуры и с выделениями G -фазы, с дислокациями преимущественно связаны мелкие поры; типичный вид пор в данном температурном интервале приведен на рис. 5. Распределение по размерам неодинаково для различных образцов, причем это характерно для оболочек обоих производителей. В некоторых образцах заполнен весь диапазон размеров пор от 2 до 80 нм при наличии и более крупных до 140 нм пор. В других образцах наблюдаются мелкие поры от 2 до 20 нм и крупные от 60 до 120 нм, причем поры промежуточного размера наблюдаются редко, максимально крупные поры достигают размера до 140 нм. Концентрация пор в различных образцах из оболочек производства МСЗ колеблется от $1,6 \times 10^{20}$ до $3,5 \times 10^{20} \text{ м}^{-3}$, а в образцах из оболочек производства ПНТЗ от $3,0 \times 10^{20}$ до $14,2 \times 10^{20} \text{ м}^{-3}$ (рис. 6).

Как и для предыдущих температурных диапазонов прослеживается увеличение среднего размера пор с увеличением скорости смещений. Также характерной особенностью является существенно большее усредненное значение концентрации пор и его разброс в образцах из оболочек производства ПНТЗ по сравнению со значениями для образцов из оболочек производства МСЗ (рис. 6).

На рисунке 7 приведены зависимости средних размеров пор в образцах из оболочек твэлов от скорости смещений для низкотемпературного (420–430°C),

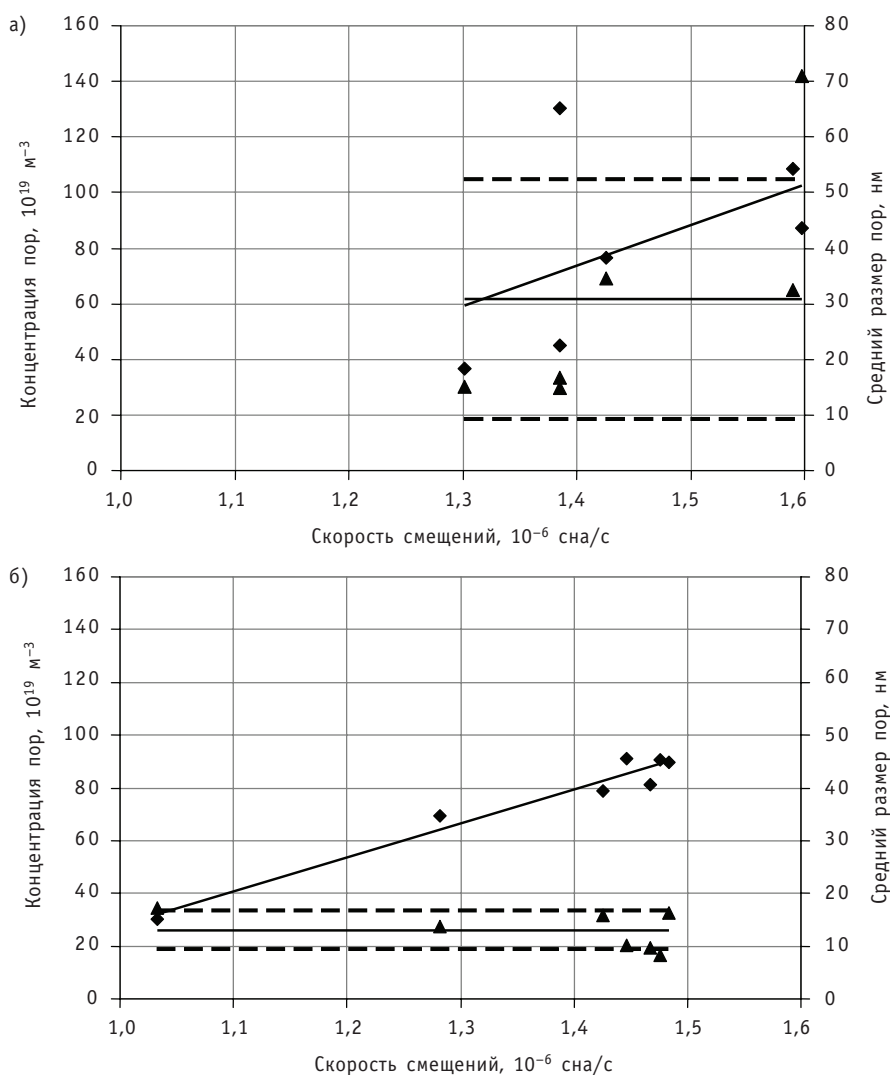


Рис. 6. Зависимости среднего размера и концентрации пор от скорости смещений для высокотемпературного (510–535°C) диапазона облучения: а) – значения для образцов из оболочек производства ПНТЗ; б) – значения для образцов из оболочек производства МСЗ; ▲ – концентрация; — – среднее; ◆ – средний размер

среднетемпературного (455–490°C) и высокотемпературного (510–535°C) диапазонов облучения. Яркими символами и жирными линиями обозначены значения для образцов из оболочек производства МСЗ, а бледными символами и тонкими линиями – из оболочек производства ПНТЗ. Видно, что с увеличением температуры скорость роста среднего размера пор увеличивается. Следует отметить, что разброс значений среднего размера пор для образцов из оболочек производства ПНТЗ существенно больше, чем для образцов из оболочек производства МСЗ.

Величина средней концентрации пор в образцах, облученных в различных температурных диапазонах, резко уменьшается с ростом температуры облучения (рис. 8), при этом значения концентраций для образцов из оболочек производства ПНТЗ больше, чем для образцов из оболочек производства МСЗ.

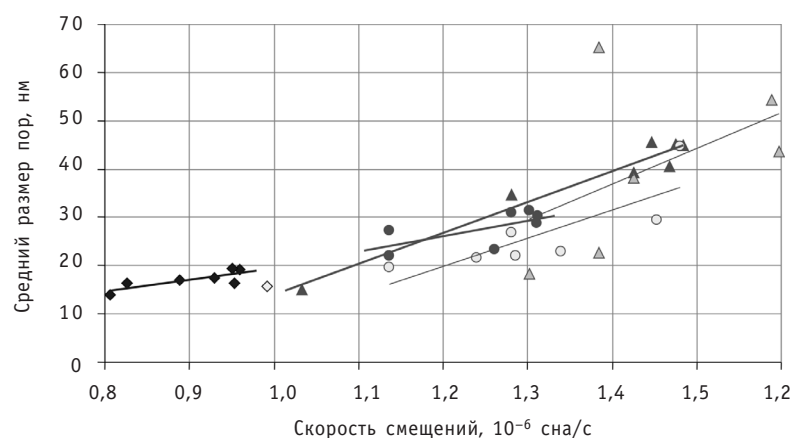


Рис. 7. Зависимости средних размеров пор в образцах из оболочек ТВЭЛов от скорости смещений для различных температурных диапазонов облучения (яркими символами и жирными линиями обозначены значения для образцов из оболочек производства МСЗ, а бледными символами и тонкими линиями — из оболочек производства ПНТЗ): ▲ — 510–535°C; ● — 455–490°C; ◆ — 420–430°C

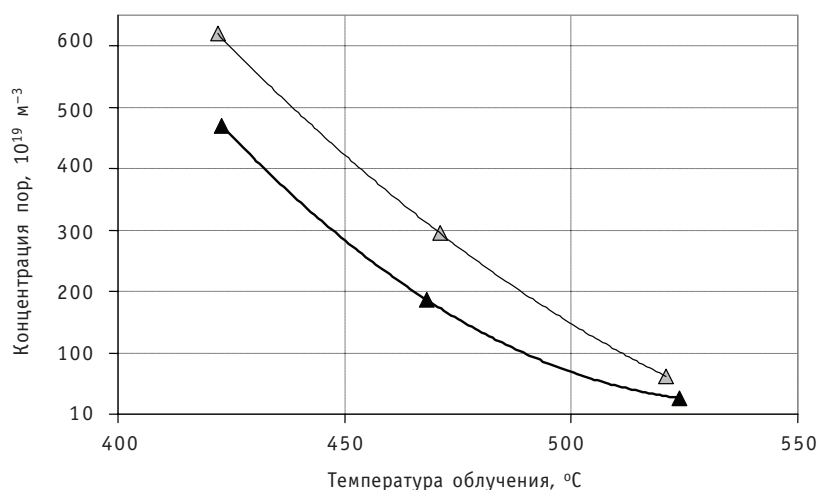


Рис. 8. Зависимость средних концентраций пор в образцах из оболочек ТВЭЛов от температуры облучения: ▲ — ЧС68 — МСЗ; △ — ЧС68 — ПНТЗ

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования характеристик радиационной пористости в оболочках ТВЭЛов из стали ЧС68 х.д., изготовленных на ПНТЗ и на МСЗ по усовершенствованной технологии, после облучения в реакторе БН-600 в течение 560 эфф.сут (четыре микрокампании) до различных повреждающих доз при разных температурах показали:

- набухание во всех исследованных температурных диапазонах (от 420 до 430°C, от 455 до 490°C, от 510 до 535°C) растет с увеличением скорости смещений;
- разброс величин набухания у образцов из оболочек производства МСЗ существенно меньше, чем у образцов из оболочек, изготовленных на ПНТЗ;
- средний размер пор с ростом скорости смещений во всех температурных диапазонах облучения увеличивается, при этом разброс значений размеров пор для образцов из оболочек производства ПНТЗ существенно больший, чем из оболочек производства МСЗ;

- зависимость средней концентрации пор от скорости смещений во всех исследованных температурных диапазонах облучения не прослеживается;
- разброс значений концентраций пор в образцах из оболочек производства ПНТЗ намного больше, чем из оболочек производства МСЗ;
- концентрация пор в оболочках из стали ЧС68 с ростом температуры облучения уменьшается, при этом значения концентраций пор в образцах из оболочек производства ПНТЗ выше, чем из оболочек производства МСЗ.

Таким образом, можно сделать вывод, что усовершенствование технологии производства оболочек твэлов из стали ЧС68 привело к уменьшению разброса характеристик пористости и, как следствие, значений распухания. В то же время разброс характеристик пористости и распухания в оболочках производства МСЗ остается значительным, что требует дальнейшей доработки технологии изготовления оболочек твэлов.

Литература

1. Обобщение и анализ результатов оп изготовлению двух комбинированных ОТВС с оболочками твэлов из сталей ЭК164 и ЧС68 в холоднодеформированном состоянии. Отчет о НИР (промежуточный по договору № 300/346-65-2005 от 30.09.2005 г.)/ФГУП ВНИИНМ, 2006. – 27 с.
2. Портных И.А., Козлов А.В., Скрыбин Л.А. Размерные характеристики ансамбля радиационных пор в холоднодеформированной стали Х16Н15М2Г, облученной высокими флюенсами нейтронов//Перспективные материалы. – 2002. – № 2. – С. 50-55.
3. Портных И.А., Сагарадзе В.В., Козлов А.В., Скрыбин Л.А. Связь характеристик радиационной пористости, развивающейся в стали ЧС-68, с температурой и дозой нейтронного облучения//ФММ. – 2002. – Т. 94. – Вып. 1. – С. 105-112.
4. Портных И.А., Козлов А.В. Методология количественного анализа радиационной пористости в металлах//ВАНТ. Серия: Материаловедение и новые материалы. – 2002. – Вып. 1 (59). – С. 41-54.

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.