

Топливные и конструкционные материалы*

А. Д. АМАЕВ, П. А. ПЛАТОНОВ

УДК 621.039.5.053:621.039.54

Ядерное горючее и его поведение под облучением

Двуокись урана как основное ядерное горючее. В настоящее время спеченные таблетки UO_2 являются основным видом горючего для реакторов АЭС во многих странах [1—6]. В связи с этим исследуется поведение UO_2 в условиях облучения при тепловых нагрузках 200—950 $\text{вт}/\text{см}^2$.

Основная причина, препятствующая повышению удельных тепловых нагрузок, связана с низкой теплопроводностью UO_2 ($0,04 \text{ вт}/\text{см}^2 \cdot {}^\circ\text{C}$) в области рабочих температур, причем теплопроводность существенно зависит от плотности и стехиометрии. Теплопроводность спеченной UO_2 на 10—15% выше, чем компактной неспеченной [6].

Поскольку одной из причин ограничения тепловых нагрузок твэла является недопустимость расплавления центральной части таблетки, важно точно знать температуру плавления UO_2 и ее изменение в условиях работы. Температура плавления UO_2 зависит от стехиометрии состава и снижается как при повышении, так и снижении отношения O/U . При $\text{O}/\text{U} = 2,25; 1,68$ и $2,00$ температура плавления составляет $2500^\circ, 2425^\circ$ и 2865°C соответственно. По мере увеличения выгорания температура плавления снижается, достигая 2620°C при $1,5 \cdot 10^{21}$ делений/ см^3 [6].

Выход газообразных осколков деления из UO_2 и смешанного окисного горючего связан непосредственно с температурными условиями работы таблеток, протекающими изменениями микроструктуры, формированием и миграцией пор.

Зависимость выхода газообразных осколков (ксенона) от линейных тепловых нагрузок (в пределах 350—700 $\text{вт}/\text{см}$) по канадским данным [6] показана на рис. 1. Отмечается, что коэффициент теплопередачи от горючего к оболочке уменьшается по мере роста давления газа под оболочкой, причем этот эффект вызывает нежелательные явления.

По исследованиям, проведенным на быстром реакторе «Дунрей» (Англия) [7], выход газо-

образных осколков из виброуплотненного окисленного горючего ($\text{U}, 15$ вес. % Pu) O_2 зависит от выгорания согласно уравнению

$$R = 1 - \frac{2}{3} \exp \left(-\frac{B}{6} \right),$$

где B — среднее выгорание в процентах.

Для окисного горючего с плотностью 78—83% от теоретической при тепловых нагрузках 300—450 $\text{вт}/\text{см}$ выход газов мало зависит от различных факторов, но возрастает с увеличением нагрузки до 550 $\text{вт}/\text{см}$ и уменьшается по мере увеличения содержания плутония в смеси и снижения плотности горючего до 70—73%.

Установлено, что выход газообразных осколков из спеченной UO_2 на 30% меньше, чем из виброуплотненной UO_2 . Увеличение диаметрального зазора от 0,05 до 0,150 мм повышает выход газообразных осколков примерно с 40 до 70% [7].

Распухание горючего отрицательно влияет на надежность работы твэлов. Накопление твердых и газообразных осколков деления увеличивает диаметр таблетки. Эксперименты, выполненные в реакторе WAGR [1], показали, что при 100°C распухание, вызванное твердыми осколками деления в UO_2 , увеличивает длину пучка твэлов (0,5 об. % на 1% выгорания). Распухание от газообразных осколков, накапливающихся по границам зерен, зависит от сдерживающего усилия. Рассмотрена модель механического взаимодействия таблеток UO_2 с оболочкой с учетом распухания, ползучести, присутствия пор и давления газа в них.

Было замечено уменьшение диаметра таблетки UO_2 при облучении в области температур 600—800 $^\circ\text{C}$ до выгорания 0,3 вес. % тяжелых атомов, что вызвало увеличение диаметрального зазора (ΔD) с $3,8 \cdot 10^{-2}$ до $10 \cdot 10^{-2}$ мм . Однако облучение при более высоких температурах (900°C) в течение нескольких месяцев не выявило указанного эффекта.

Распухание горючего от газовых осколков начинается при низких выгораниях и усиливается с повышением температуры. Распухание от твердых осколков деления примерно пропорционально выгоранию и степени окисления различных продуктов деления. Установлено, что величина объемного распухания колеблется

* Обзор иностранных докладов на IV Международной конференции по мирному использованию атомной энергии. Женева, 1971 г.

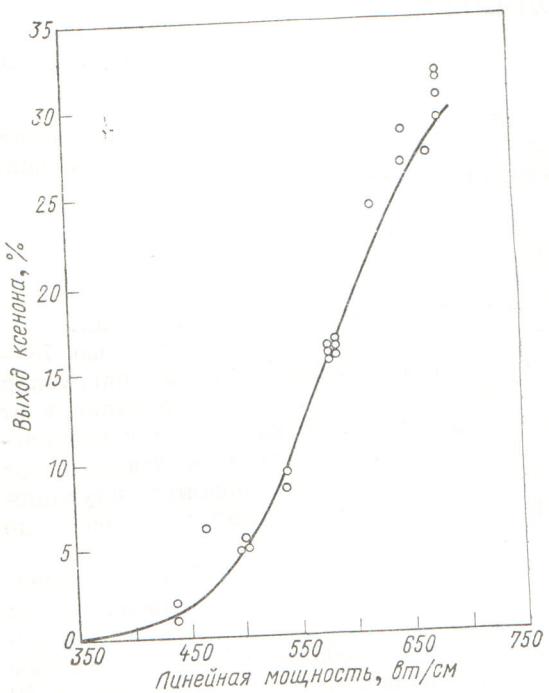


Рис. 1. Зависимость выхода газа от мощности (кривая — теоретический выход).

от 0,32 до 1,3% на 1% выгорания. Электронно-микроскопическое исследование показало, что распухание от твердых осколков составляет $\sim 0,5\%$ на 1% выгорания [6].

Результаты исследования ползучести окисного горючего изложены в работах [1, 8, 9]. Ползучесть UO_2 стехиометрического состава удовлетворяет уравнению [1]

$$\dot{\varepsilon} = \frac{5,3 \cdot 10^9 \sigma}{(D - 88) G^2} \exp\left(-\frac{90000}{RT}\right) u^{-1},$$

где $\dot{\varepsilon}$ — скорость ползучести; D — плотность UO_2 , % от теоретической ($94 \leq D \leq 100$); G — размер зерна, $\mu\text{м}$ ($4 \leq G \leq 25$); σ — напряжение, МПа ($6 \leq \sigma \leq 35$); T — температура, $^{\circ}\text{К}$ ($1473 \leq T \leq 1773$).

Температурная зависимость ползучести UO_2 под облучением показана на рис. 2 [1].

Изучалась также ползучесть смешанного окисного горючего $(\text{U}_1\text{Pu})\text{O}_2$ при сжатии и изгибе [8]. При температурах 1000 — 2000°C установлены две области ползучести.

Изучение механических свойств окисного горючего и, в частности, характера разрушения и деформационной способности до 1800°C при

использовании методики чистого изгиба выявило наличие критической температуры хрупкости (T_K) в UO_2 . Ниже этой температуры, которая равна примерно 0,5 температуры плавления, разрушение двуокиси происходит хрупко и величина разрушающего напряжения не зависит от температуры испытания [5]. Выше температуры $T_K \approx 1400^{\circ}\text{C}$ прочность UO_2 резко уменьшается и величина ее зависит от скорости деформации, величины зерна, пористости и состава окисного горючего. Снижение скорости деформации примерно в 100 раз приводит к уменьшению прочности с 1400 до $500 \text{ кг}/\text{см}^2$ при температуре 1700°C . Установлено, что смеси окислов являются менее прочными и более пластичными.

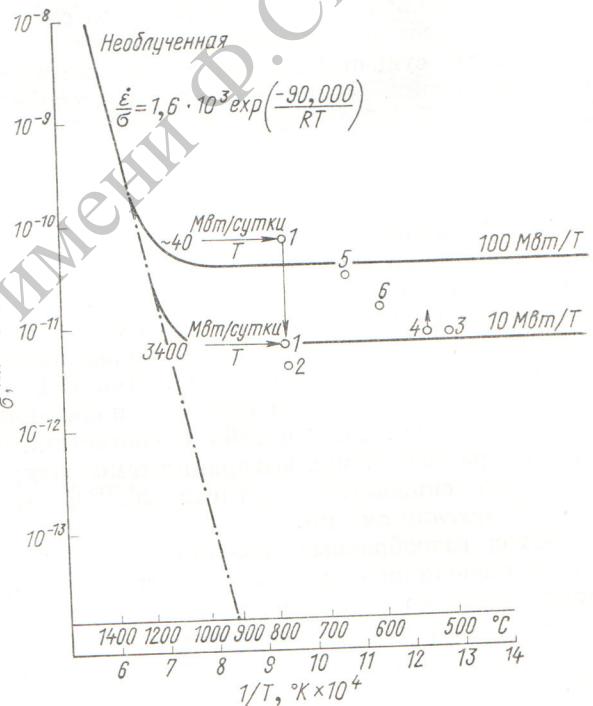


Рис. 2. Ползучесть UO_2 (размер зерна 10 $\mu\text{м}$) под облучением:

Цифры на кривой	Номер образца	Мощность, мбт/с	Доза, мбт/с	Схема испытания
1	1	22	до 3400	Sжатие при 34 Мп/м²
2 *	2	23	340	
3 *	3	4	75	
4 *	3	40	750	
5	1	50	375	
6	1	25	188	

} Изгиб при напряжении в трех точках до максимального напряжения 34 Мп/м^2

* Опыты по релаксации.

ми, чем UO_2 ; материал с размером зерен 1—2 мк обладает высокой пластичностью при температуре выше T_k .

Интересен факт обнаруженного различия в деформационной способности UO_2 различных партий. Так, для одной партии UO_2 пластическая деформация возникла при 1400°C , а для другой партии она не наблюдалась до 1800°C [6].

Наличие критической температуры хрупкости у UO_2 и смешанных окисных горючих и тот факт, что рабочий диапазон температур горючего в твэлах находится ниже и выше T_k , вызывают образование радиальных трещин в периферийных кольцевых участках таблеток одновременно с наличием монолитной деформированной центральной зоны. Образование радиальных трещин в UO_2 связано с параболическим распределением температур во время облучения таблеток, вследствие чего возникают термические напряжения, превышающие предел прочности.

Установлено, что число радиальных трещин приблизительно пропорционально удельному тепловыделению и составляет около одной трещины на 2 Mwt/m урана [1]. Отрицательное влияние радиальных трещин в UO_2 на надежность работы твэлов отмечается во многих докладах [3—5, 10] и др.

Механическое взаимодействие спеченных таблеток окисного горючего с оболочкой твэлов в условиях облучения. Результаты изучения механического взаимодействия топливного сердечника и оболочки из циркаля изложены в докладах [2—4, 10, 11].

Механическое взаимодействие таблеток и оболочки твэлов в условиях облучения вызвано увеличением диаметра таблетки за счет температурного расширения и радиационного расплывания таблеток. Определенный интерес представляют результаты изучения механического взаимодействия [2]. Эксперименты выполнены на 24 опытных твэлах с таблетками UO_2 . В ходе экспериментов варьировались высота таблеток (7, 14, 20 и 30 мм), диаметральный зазор (0,04 и 0,10 см) и форма таблетки (плоские торцы, лунка с одной стороны и лунка со снятой фаской).

При всех этих параметрах изучено влияние линейных тепловых нагрузок (vt/cm) и выгорания на изменение длины стержневого твэла и на радиационное расплывание. Для проведенных экспериментальных условий получены следующие выводы. Высота таблетки и ее форма существенно влияют на формирование «bamboo»

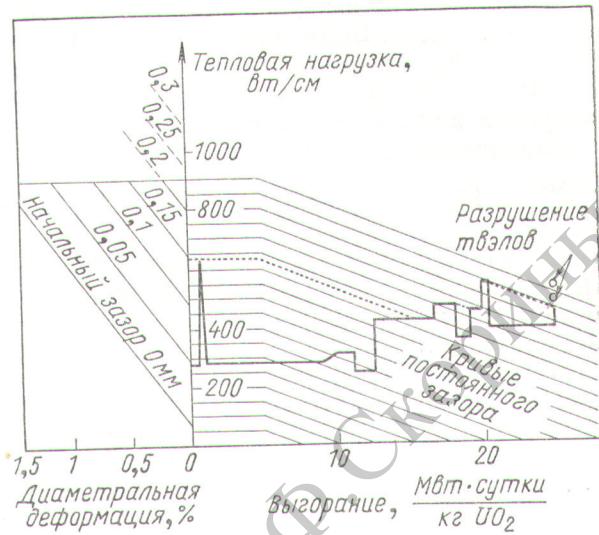


Рис. 3. Схема механического взаимодействия оболочки и таблеток горючего.

..... — предел взаимодействия; — — режим работы в реакторе HBWR.

ковых» выступов и на осевую деформацию стержневого твэла. Наиболее выгодны короткие таблетки с лункой и фаской. Увеличение диаметрального зазора уменьшает удлинение оболочки. Чем выше исходная пластичность оболочки, тем большего выгорания можно достичь без разрушения оболочки. Радиационное расплывание растет линейно с ростом выгорания, достигая 1% при выгорании $15 \text{ Mwt}\cdot\text{сутки}/\text{кг} \text{UO}_2$. Расплывание начинается при выгорании выше $5 \text{ Mwt}\cdot\text{сутки}/\text{кг} \text{UO}_2$. Чем больше величина $\Delta D/D$, тем большее значение выгорания может быть достигнуто без разрушения оболочки, но при $\frac{\Delta D}{D} = 1,5\%$ увеличение линейной мощности свыше $800 \text{ вт}/\text{см}$ ограничивается возможным расплавлением центральной части таблетки UO_2 . Характер распределения интенсивности потока нейтронов по высоте твэлов также влияет на допустимое выгорание горючего.

Таким образом, существует определенная корреляция между диаметральным зазором, тепловой нагрузкой и выгоранием, достижаемым без разрушения. Эти зависимости изображены на рис. 3 в виде линий «равных зазоров», позволяющих прогнозировать разрушение твэлов определенной конструкции. Прогнозирование разрушения оболочки посредством линий «равных зазоров», изображающей взаимодействие таблеток с оболочкой, подтверждается эксперимен-

тальными данными разрушения облученной оболочки (см. рис. 3). Была определена зависимость эффективной деформации оболочки от линейных тепловых нагрузок на оболочку на основании измерения длии твэлов в реакторе HBWR [4] и установлены условно три области, когда:

$$1) \frac{\Delta D}{D} = 1\%; \quad 2) \frac{\Delta D}{D} = 0,3 \div 0,7\%; \quad 3) \Delta D/D$$

весьма мало. Для этих трех областей значений $\Delta D/D$ в оболочке будут наблюдаться небольшие, средние и большие деформации до разрушения соответственно.

Критическая эффективная деформация зависит от отношения осевых напряжений к кольцевым напряжениям. Следует заметить, что деформации могут быть распределены неравномерно по сечению трубы из-за наличия овальности, разностенности и эффектов заклинивания таблетки. В результате этого возможна очень большая локальная деформация с повреждением оболочки [3].

В процессе облучения в UO_2 образуются радиальные трещины. Поскольку горячая центральная область UO_2 в условиях работы расширяется, возникающие трещины в наиболее холодной части UO_2 стремятся раскрыться. Если сила трения между оболочкой и горючим достаточна, то возникает локализация деформации оболочки в зонах расположения радиальных трещин в UO_2 из-за наличия градиента кольцевого напряжения в оболочке. Вместе с тем эта концентрация напряжения при снижении мощности полностью не обратима. Последующий цикл нагружения может привести к утонению оболочки. Такие циклы в принципе могут повторяться до разрушения оболочки.

Средняя деформация оболочки при переходных режимах может быть определена из формулы

$$\bar{\varepsilon}_t = \frac{c n^2}{2 \mu \pi},$$

где μ — коэффициент трения; n — коэффициент деформационного упрочнения; c — число трещин в горючем в предположении, что допустимая деформация равна n . Если c , μ и n известны, то можно предсказать число циклов пуска и остановки реактора, приводящее к возникновению трещин в оболочке. В этой связи весьма интересным является эффект времени релаксации напряжения при данном уровне линейных тепловых нагрузок.

Если мощность реактора растет постепенно, то возникшая деформация будет малой из-за значительного времени, в течение которого

произойдет релаксация упругих напряжений как в горючем, так и в оболочке, и это обеспечит относительно меньшую вероятность повреждения оболочки. При более высокой начальной мощности реактора процессы релаксации протекают быстрее, так как температура выше, что в свою очередь позволяет увеличивать мощность. Например, в реакторе BWR время релаксации напряжения при линейной мощности 525 wt/cm составляет примерно 10 ч.

Важным экспериментальным фактором, позволяющим анализировать механизм возникновения локальной деформации и трещинообразования в облученных элементах с окисным горючим, является описанная в докладах [2—4, 10] связь мест повреждения оболочки твэлов с расположением радиальных трещин в таблетках.

Металлографическое исследование облученных элементов показало, что зона локальной деформации оболочки, или место ее разрушения, почти всегда находится против радиальной трещины в таблетках UO_2 ; повреждение оболочки начинается с внутренней ее поверхности.

При анализе возможных случаев повреждения оболочек важны следующие моменты: повышенные тепловые нагрузки и энергетические циклы к концу периода облучения;

малые диаметральные зазоры, которые в сочетании с температурным расширением горючего и возможным распусканием приводят к механическому взаимодействию оболочки таблетки горючего;

локальная деформация оболочки в зонах контакта таблеток и образования радиальных трещин в UO_2 ;

охрупчивание оболочки в результате нейтронного облучения.

С увеличением выгорания эффект механического взаимодействия растет [11], так как большому выгоранию соответствует большое удлинение. Различные диаметральные зазоры (0,15 и 0,30 мм) не оказывают влияния на удлинение твэлов при одной и той же линейной мощности. Однако этот результат находится в некотором противоречии с данными [2—4].

Виброуплотненное окисное горючее. Материалы докладов свидетельствуют о том, что к виброуплотненному горючему проявляется определенный интерес [5, 12, 13]. Оно исследовано при линейных тепловых нагрузках до 915 wt/cm , отработана технология изготовления твэлов и проводятся испытания в реакторе АЭС [5]. Однако отмечается, что в США интерес к этому виду горючего является побочным

и в массовом масштабе не предполагается использовать его в твэлах для реакторов АЭС.

Целесообразность промышленного использования виброуплотненной UO_2 разные страны рассматривают со своих точек зрения. В дискуссиях по этому вопросу позиция Канады была изложена Ж. Робертсоном. Преимущества виброуплотненной UO_2 уменьшаются в связи с тем, что UO_2 в гранулах является адсорбентом влаги и по своей чистоте уступает компактной спеченной двуокиси урана. Загрязненность или влажность UO_2 ухудшает надежность работы оболочек твэлов в отношении коррозии внутренней поверхности и наводороживания оболочки. Это обстоятельство делает порошковую UO_2 неконкурентоспособной по сравнению с компактными спеченными таблетками UO_2 . Канадская позиция по этому вопросу уже определена. Они не считают возможным использовать виброуплотненные UO_2 в стержневых твэлах, поэтому исследования этого вопроса сняты из программ канадских работ.

Смешанное окисное, карбидное и другие виды горючего. В рамках программ, главным образом по быстрым реакторам, ведутся работы по исследованию смешанного окисного горючего $UO_2 - PuO_2$ и $PuO_2 - ThO_2$. Освоен процесс его производства. Установлено, что физико-механические и другие свойства смешанного горючего могут отличаться от свойств чистой UO_2 [8]. Показано, что с увеличением содер-

жания кислорода ($\frac{O_2}{M} \approx 1,99 - 2,04$) увеличивается выход газов и рост зерна. Изучена зависимость изменения объема от выгорания для трех типов смешанного горючего $UO_2 - PuO_2$ (гомогенные смеси, механические смеси, сферические частицы 400 мк PuO_2 , диспергированные в естественной UO_2). Для всех трех видов горючего изменение объема было незначительным (0,6% при выгорании 11 $Mет \cdot сутки/кг$ горючего).

Изучены механические, физические и термодинамические свойства и поведение смешанного горючего в условиях работы быстрого реактора в отношении выхода газообразных осколков и совместимости с оболочкой в натриевом теплоносителе [8]. Изучена диаграмма состояния уран — плутоний — кислород до температуры 3000° С для $\frac{O}{U+Pu} = 2$.

Изучения физических свойств смесей — окислов охватывают диапазон температур до плавления жидкой фазы. Изучены, в частности, поверхностное напряжение, вязкость, сжи-

маемость, плотность, температурное расширение, зависимость теплопроводности от стехиометрии и содержания плутония. Изучены ползучесть смесей окислов в условиях облучения и влияние на нее напряжения, температуры, состава, структуры потока нейтронов [8].

В программе исследования топливных материалов для быстрого реактора «Феникс» на 1000 $Mет(эл.)$ рассмотрены вопросы создания и поведения твэлов с горючим $(U, Pu)O_2$ нестехиометрического состава. Изучены совместимость горючего с оболочкой из нержавеющей стали на натриевом контуре и процессы окисления; теплопроводность смеси окислов (установлено небольшое снижение теплопроводности при увеличении содержания PuO_2), деформация оболочки, обусловленная ползучестью горючего; деформация оболочки (сталь 316) от давления газовых осколков и температуры; вибрация и влияние облучения на материал оболочек. Разработан модельный эксперимент для изучения вопросов теплопередачи и распределения температуры, искривления стержня, изменения размеров и геометрии всех компонентов сборки, а также взаимодействия стержня и дистанционирующих деталей.

Изучению механической прочности на сжатие смешанного горючего $UO_2 + 20$ вес. % PuO_2 при температурах 350°, 500° и 600° С в условиях облучения ($1 \cdot 10^{14}$ деление/ $см^3 \cdot сек$), а также изучению ползучести в области темпе-

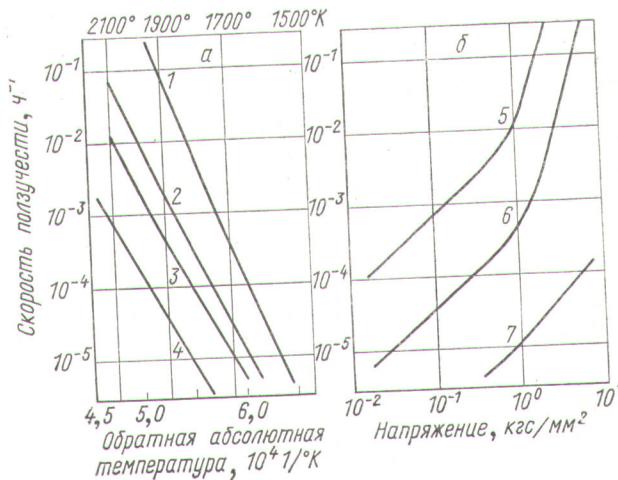


Рис. 4. Зависимость скорости ползучести $UO_2 - 20\%$ PuO_2 (95% теоретической плотности) от температуры (a) и напряжения (б).

Кривые 1-4 — напряжение соответственно 0,1 кгс/мм²; кривые 5-7 — температура соответственно 2100°, 1900° и 1700° К.

ратур 1500—2100° К при напряжениях 0,1—5 кгс/мм² посвящен доклад [9]. На рис. 4 представлены результаты испытания на ползучесть этого горючего при различных температурах и напряжениях. Обращено особое внимание на исследование UO₂ — PuO₂ с низкой плотностью (80—86% теоретической). Для испытания на реакторе «Рапсодия» приготовлена партия таблеток UO₂ — 30 вес.% PuO₂.

Карбид урана (UC) и силицид урана (U₃Si) исследуются применительно к твэлам для реакторов с органическим теплоносителем, разрабатываемых в Канаде [14]. Изучен вопрос о влиянии облучения на UC и освоены методы его производства. Было установлено, что влияние метода производства является менее важным фактором, чем структура и плотность UC. Из-за повышенной плотности и радиационной стойкости предпочтительным является литой UC. Представлены подробные данные по исследованию сборок твэлов с UC. Большое распускание U₃Si является основным недостатком. В настоящее время ведутся работы по снижению распускания U₃Si в условиях облучения.

В ФРГ исследуется горючее для высокотемпературных реакторов; определены основные требования и конструкции твэлов [15]. В качестве топливного материала рассматриваются сферические частицы размером 300÷800 мк уран-ториевого карбида (U, Th)C₂ и уран-ториевой двуокиси (U, Th)O₂. Сферические графитовые топливные элементы (шары) диаметром 60 мм с очень высокой механической прочностью используются в реакторах AVR и THTR. Кроме того, созданы цилиндрические твэлы. Изучен процесс выхода газов при температурах в центре горючего до 1800—2000° С [15]. Исследуются тройная система и совместимость с аустенитной и ферритной нержавеющей сталью в присутствии 3% V₂C и VC при температурах 700—800° С.

Опыт эксплуатации стержневых твэлов в реакторах с водой под давлением и в кипящей воде

Фирмы «Дженерал электрик», «Вестингауз» и «Комбасчи инжиниринг» обобщили опыт эксплуатации сборок твэлов стержневого типа (главным образом со спеченными таблетками UO₂ в оболочках из циркаля) в реакторах АЭС США [5].

Вначале в связи с тем, что изготовление трубок из циркониевых сплавов было дорогим, для

систем с водой под давлением применялась в качестве оболочек твэлов аустенитная нержавеющая сталь. Однако из-за коррозионного растрескивания нержавеющей стали, особенно в условиях работы в кипящей воде, от использования стальных оболочек отказались.

Циркониевые сплавы оказались превосходным и коррозионностойким материалом оболочек твэлов АЭС в воде под давлением и в кипящей воде. Использование борного регулирования на станциях PWR не вызвало каких-либо осложнений, а в системах BWR регулирование реактивности ведется без введения борной кислоты в воду.

Опыт эксплуатации легководных реакторов Дрезденской и Сакстонской АЭС показал, что даже в условиях повреждения твэлов потери горючего (UO₂) незначительны. На оболочках твэлов АЭС в Шиппингпорте и Сакстеоне после их работы в течение 1157 дней не было обнаружено усиления коррозии или наводороживания. В то же время при исследовании оболочек работающих в кипящей нейтральной воде твэлов реакторов EBWR и «Дрезден-1» обнаружена более толстая и неравномерная окисная пленка, чем в случае внераекторных испытаний при той же температуре. Однако поглощение водорода было невелико.

По удлинению твэлов было установлено механическое взаимодействие горючего с оболочкой. На величину удлинения влияют: коэффициент трения между оболочкой и горючим, трещинообразование в топливной таблетке, неправильность формы оболочки и ее механические свойства, форма торца таблетки, диаметральный зазор, пористость горючего, а также время релаксации и процессы циклирования. Прогнозирование влияния указанных факторов на деформацию оболочки ведется на ЭВМ. В реакторе «Янки-Роу» после выгорания 13 600 Мвт·сутки/т твэлы удлинились на 0,3%, а в CVTR после выгорания 16 700 Мвт·сутки/т — на 0,18%.

При относительно высоких тепловых нагрузках в реакторах наблюдается повышение скорости ползучести и возникновение малоцикловой усталости. Соотношение между степенью пластической деформации и числом циклов до разрушения оценивается по формуле

$$\sigma_p N \alpha = K D,$$

где σ_p , N и D — степень пластической деформации, число циклов до разрушения и пластичность при растяжении соответственно; K , α — константы.

Отмечается отрицательное влияние радиальных трещин в UO_2 на локализацию деформации в оболочке. Некоторые случаи разрушения оболочек происходили из-за загрязненности горючего влагой, углеводородом и галогенами. Влага и углеводород служат источниками образования водорода, который взаимодействует с оболочкой и образует хрупкий гидрид циркония. Галогены, фториды и иод усиливают коррозию оболочки под напряжением. В этом отношении фтор более агрессивен, чем иод, и уже малые концентрации фтора вызывают нежелательные явления. В связи с этим в США установлен максимальный предел содержания фтора в таблетках UO_2 (не более 25—50 частей на 1 млн.).

Были случаи образования сквозных дефектов в оболочках твэлов после работы в течение шести лет при высоких температурах горючего. Внераакторное исследование циркалоя также показало усиление коррозии под напряжением и образование за короткое время трещин в присутствии паров иода. При рассмотрении заданий по созданию твэлов важно установить оптимальное соотношение между максимальными выгоранием и линейной тепловой нагрузкой. Для достижения большего выгорания имеется тенденция к снижению тепловых нагрузок.

В США при разработке твэлов основное внимание уделяется ограничению максимальной кольцевой деформации оболочки величиной в 1% и недопущению расплавления центральной части таблетки UO_2 . Предельные тепловые нагрузки для достижения деформации разрушения составляют примерно 850—950 $\text{вт}/\text{см}$. В проектных разработках обязательным условием является ограничение максимальной линейной нагрузки пиковым значением 720 $\text{вт}/\text{см}$ (при кратковременном превышении мощности реактора). Имелись случаи повреждения твэлов при большом выгорании (48 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$) из-за осевой деформации оболочки, приведшей к утонению стенки оболочки на стыках таблетки до 0,4 мм. Другие твэлы содержали таблетки с плотностью 97,3% теоретической; в них отсутствовал диаметральный зазор. После выгорания 40 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$ радиальная деформация составляла 3,5%. Анализ показал, что соответствующее распускание можно компенсировать путем уменьшения плотности таблеток. Предложенное ограничение кольцевой деформации оболочки (равной 1%) представляется чрезмерно осторожным.

Подтверждено хорошее поведение твэлов в реакторах «Шиппингпорт» и «Дрезден-1».

Недавно в реакторе «Дрезден-2» возникло повреждение твэлов, очевидно, вызванное производственным браком.

На АЭС «Жанне» и «Безнау» наблюдалась высокая активность в первичном контуре. Появление дефектов в оболочках твэлов связывается с технологией их производства. Наилучшее понимание свойств горючего и оболочки, а также их взаимодействия наряду с результатами применения разработанных программ позволит создать твэлы с максимальной линейной нагрузкой 575 $\text{вт}/\text{см}$ и расчетным выгоранием 50 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$. Кажется маловероятным, что в ближайшем будущем существенно возрастут максимальные линейные нагрузки и выгорание. Опыт работы реактора на АЭС «Дрезден» и других указывает на возможность достижения максимального выгорания 40 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$.

Проведены эксперименты при δ/D (отношение толщины оболочки к наружному диаметру), равном 0,058 и 0,090. В первом случае твэлы успешно проработали до выгорания 48 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$, а во втором до 60 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$ при линейной нагрузке 210—490 $\text{вт}/\text{см}$.

В другом эксперименте при плотности горючего 81,4% от теоретической и нулевом начальном зазоре изменения диаметра оболочки после выгорания 49 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$ замечено не было.

В ампульных экспериментах в реакторе GETR при максимальной линейной мощности 910 $\text{вт}/\text{см}$ было достигнуто выгорание, превышающее 90 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$.

Дальнейшим подтверждением достижения высоких выгораний и тепловых нагрузок в легко-водных реакторах является успешное облучение горючего для реактора АЭС «Пич-Боттом-2» (до выгорания 42 000 $\text{Мвт}\cdot\text{сутки}/\text{т}$) при пиковой линейной мощности 750 $\text{вт}/\text{см}$.

Повреждение твэлов в оболочках из аустенитной нержавеющей стали в реакторе «Гумболт-Бей» было связано с коррозионным растрескиванием их в кипящей воде. Замена оболочек из нержавеющих сталей на циркалоевые в этом реакторе сняла проблему их повреждения. Вместе с тем поведение оболочек из нержавеющей стали в реакторах «Сан-Онофр-1», «Коннектикут Янки» подтверждает успех, достигнутый в «Янки-Роу». В реакторе «Биг-Рок-Пойнт» применимы твэлы со спеченными таблетками и виброуплотненные твэлы в оболочках из циркалоя и нержавеющей стали. Дефекты в оболочках из нержавеющей стали возникли

по причине коррозии под напряжением, как это наблюдалось в реакторе VBWR. Дефекты в виброуплотненных элементах были вызваны загрязнением горючего. Дефекты в оболочках из циркаля с обоими видами горючего возникли во время изготовления твэлов и в результате попадания меди в контурную систему (в реакторах SGHWR и «Гарильяно»). Поэтому в разрабатываемых кипящих реакторах медные сплавы исключены из контурных систем.

В канадские реакторы NPD и «Дуглас-Пойнт» было загружено 8569 сборок твэлов в оболочках из циркаля с таблетками из спеченной UO_2 . Все эти сборки показали весьма хорошие результаты до выгорания 13 000 $\text{Мет}\cdot\text{сутки}/\text{т}$ при линейной мощности 500 $\text{вт}/\text{см}$; обеспечена размерная стабильность; выход газов под оболочки составлял менее 5%.

Коррозия оболочки и поглощение дейтерия зависели от водного режима в первом контуре. Если содержание дейтерия, растворенного в воде, было менее 0,5 мл $\text{D}_2/\text{кг D}_2\text{O}$, то на поверхности оболочки образовывалась серо-белая пленка ZrO_2 толщиной до 20 $\mu\text{м}$ и дейтерия в оболочке было очень мало. Если же в теплоносителе содержалось более 5 мл $\text{D}_2/\text{кг D}_2\text{O}$, то в течение 60 дней не образовывалась белая пленка окиси циркония.

Из 8569 сборок, загруженных в NPD и «Дуглас-Пойнт», к концу 1970 г. 38 сборок были признаны дефектными, причем пять из них были повреждены механически. Если к ним добавить еще 10 сборок, у которых наблюдалось превышение уровня активности, то число дефектных сборок составит 48, или 0,56% от загруженного количества. Дефектные сборки оставались нетронутыми, некоторые из них были легко извлечены из реактора, а другие оставались еще в реакторе в течение нескольких лет в таком состоянии.

Экспериментальные сборки для канадских реакторов «Джентли» (30 сборок) и «Пикеринг-1» (40 сборок) испытываются на петлях при режимах 600 $\text{вт}/\text{см}$, 270° С на входе, 55 атм для «Джентли» и 530 $\text{вт}/\text{см}$, 260° С на входе, 95 атм для «Пикеринг-1». Аналогичные сборки, но с обогащенной UO_2 испытываются в реакторе NPD при 450 $\text{вт}/\text{см}$. Испытания показали, что коррозия и наводороживание оболочек не ограничивают работоспособность твэлов указанных реакторов. Испытанные сборки успешно проработали при среднем содержании водорода 0,02 вес. % (при максимальном содержании водорода 0,073 вес.%) и толщине окисной пленки до 20 $\mu\text{м}$.

Одна из проблем при проектировании твэлов — трудность учета влияния радиальных трещин на деформационную способность оболочки в зонах локализации напряжений. При этих «жестких» условиях работы оболочки возможно образование дефектов по ее толщине. Холодная деформация и облучение вызывают снижение пластичности циркониевых сплавов даже при температуре 300° С. Поэтому вероятность возникновения повреждения оболочки уменьшается, если она обладает большой пластичностью.

Измеренная кольцевая деформация при выходе реактора на мощность АЭС составляет меньше 0,1%, что обеспечивает наличие большого коэффициента запаса по пластичности оболочки при работе реактора.

Однако при наличии паров иода на внутренней поверхности нагруженной оболочки может усиливаться процесс образования трещин. Было обнаружено, что возникновение трещин в циркале при 300° С зависит от кристаллографической ориентировки, степени деформационного и радиационного упрочнения, размера зерна и концентрации иода. При этом эффект усиливается в присутствии кислорода. Высокая исходная пластичность оболочки должна уменьшить указанные эффекты. Тем не менее требуется весьма большая осторожность в попытках изменить параметры работы разрабатываемых вновь твэлов по сравнению с твэлами, изученными в реакторах [6].

Отличительная особенность сборок твэлов канадских тяжеловодных реакторов — высокая отработанность конструкции, наличие минимального числа деталей (6 штук в сборке) и отсутствие деталей из нержавеющей стали. В проектах развития систем CANDU—PWR [16] рассматриваются пути дальнейшего усовершенствования конструкций и повышения теплонапряженности, предусматривается повышение температуры воды на выходе из канала с 300° до 337° С.

В случае систем PHWR нет каких-либо принципиальных технологических или экономических препятствий для коммерческой эксплуатации АЭС. При изготовлении каналов во всех реакторах PHW и BLW будет использован сплав циркония с 2,5 вес. % ниобия.

Рассмотрен также вариант CANDU—BCR с органическим теплоносителем, максимальной температурой на выходе из канала 420° С и на оболочке 485° С. Для этого варианта канала могут быть изготовлены из сплавов оженнит-0,5

и Zr + 2,5 вес. % Nb. Горючим будет служить карбид урана. Линейные тепловые нагрузки составят до 650 $\text{вт}/\text{см}^2$.

Для увеличения мощности, которая ограничивается пластичностью оболочки, предусмотрено выполнение внутриреакторных исследований твэлов, введение отверстий в центральной части таблетки, использование графитовой смазки между оболочкой и горючим (для уменьшения коэффициента трения и снижения локальной деформации) и другие меры.

Циркониевые сплавы как основной конструкционный материал для тепловых водо-водяных реакторов

Механические свойства под облучением. В настоящее время в зарубежных странах во всех АЭС с кипящими реакторами и в большинстве реакторов с водой под давлением в качестве материалов оболочек твэлов используется циркало [1—6, 8, 11, 12]. В реакторах канального типа, которые строятся или запланированы к строительству, трубы будут изготовлены из сплава циркония с 2,5 вес. % ниобия. В действующих реакторах использован холоднодеформированный циркало [17, 18].

Основным критерием определения срока службы труб для реакторов канального типа является деформация ползучести труб под облучением. Скорость ползучести труб, согласно данным работы [17], удовлетворяет выражению

$$\dot{\varepsilon}_t = K 10^{-25} \sigma_t \Phi (T - 160^\circ),$$

где $\dot{\varepsilon}_t$ — диаметральная скорость ползучести сплава Zr + 2,5 вес. % Nb [17]

части, ч^{-1} ; σ_t — кольцевые напряжения (6 — 20 $\text{кгс}/\text{мм}^2$); Φ — поток нейтронов (10^{13} — $3,5 \cdot 10^{13}$ $\text{нейтр}/\text{см}^2 \cdot \text{сек}$, $E > 1 \text{ Мэв}$); T — температура (240 — 320°C); K — константа ($5,8$ для холоднодеформированного циркало-2; $2,1$ для холоднодеформированного Zr + 2,5 вес. % Nb; $3,2$ для термообработанного Zr + 2,5 вес. % Nb).

Исследовалась также [17] ползучесть трубы из ожогенного-0,5 при 335°C в потоке $2 \cdot 10^{13}$ $\text{нейтр}/\text{см}^2 \cdot \text{сек}$ в реакторе WR-1. Измеренная скорость ползучести при 29 и $45 \text{ МН}/\text{м}^2$ составила $3,5 \cdot 10^{-8}$ и $6,2 \cdot 10^{-8} \text{ ч}^{-1}$ соответственно. Термообработанный искусственно наводороженный до 0,05 вес. % сплав циркония с 2,5 вес. % ниобия после пребывания в течение 9000 ч при 335°C под напряжением 41 и $89 \text{ МН}/\text{м}^2$ имеет такую же скорость ползучести, как ненаводороженный сплав.

Несомненный интерес представляет один из возможных механизмов радиационной ползучести циркониевых сплавов, основанный на эффекте радиационного роста [18]. Отмечено, что абсолютная величина радиационной скорости ползучести при малых напряжениях, низкой температуре и интенсивном нейтронном потоке протекает как ползучесть «течением». Изменение длины вследствие роста было весьма малым по сравнению с наблюдаемым в облученном уране. За период работы реактора на мощности в течение 200 000 ч деформация ненапряженного холоднодеформированного циркало не должна превышать 0,2%.

В табл. 1 обобщены результаты механических испытаний образцов материала трубы из сплава циркония с 2,5 вес. % ниобия.

Таблица 1

Материал и его состояние	Вид испытаний	$\sigma_{0,2}$	σ_b	$\sigma_{b \text{ ви}}$	Удлинение, %	Сужение, %
		мн/м ²	мн/м ²	мн/м ²		
Холоднодеформированный Zr + 2,5 вес. % Nb	ПрН	365	524	—	15	50
	ПН	530	554	—	23	54
	ВД	517	—	585	3—7	30
Термообработанный Zr + 2,5 вес. % Nb	ПрН	475	593	—	19	61
	ПН	655	675	—	12	50
	ВД	635	—	751	2—5	20
Холоднодеформированный Zr + 2,5 вес. % Nb (облучен $6 \times 10^{20} \text{ нейтр}/\text{см}^2$, $E > 1 \text{ Мэв}$)	ВД	758	—	768	~ 1	15—17

П р и м е ч а н и е: ПрН — в продольном направлении, ПН — в поперечном направлении, ВД — испытание на разрыв внутренним давлением, $\sigma_{b \text{ ви}}$ — прочность при испытании на разрыв внутренним давлением.

Представляют интерес результаты испытаний извлеченной из реактора NRU трубы из холоднодеформированного сплава Zr — 2,5 вес. % Nb, в которой случайно возник дефект глубиной в 25% от толщины стенки. Испытание трубы на разрыв внутренним давлением показало, что разрушающее напряжение в зоне дефекта было всего на 15% меньше, чем разрушающее напряжение неповрежденной зоны этой же трубы.

Подробные исследования, выполненные на канальных трубах со сквозными дефектами различной протяженности (от 5 до 10 см) с целью определения критической величины дефекта при различных напряжениях и температурах, подтвердили, что в условиях эксплуатации будет происходить не хрупкое разрушение, а утечка теплоносителя из трубы.

Результаты исследований показали, что при температуре 300° С и рабочих напряжениях 10—12,5 кгс/мм² критическая длина трещины должна составить около 10 см и почти не зависит от облучения и наводороживания. При температуре 20° С критическая длина трещины равна примерно 10 см, а после одновременного воздействия облучения и наводороживания до 0,03 вес. % она уменьшается до 4 см [17].

В 1969 г. из английского реактора SGHWR на АЭС «Уинфрит» были извлечены шесть экспериментальных труб из сплава Zr + 2,5 вес. % Nb. Осмотр этих труб показал, что после извлечения из реактора они находятся во вполне удовлетворительном состоянии, хотя ранее извлеченные небольшие мониторные образцы оказались в неудовлетворительном состоянии с точки зрения коррозии. В докладе [18] отмечается целесообразность использования труб из сплава Zr + 2,5 вес. % Nb при усовершенствовании реакторов типа SGHWR.

Вопросы наводороживания и окисления оболочек твэлов и канальных труб. Согласно оценке, наводороживание циркониевых сплавов за 30-летний период эксплуатации канальных труб составляет 0,02—0,03 вес. % [17]. При этом микроструктура труб такова, что гидриды благоприятно ориентированы относительно кольцевых напряжений, возникающих от давления теплоносителя, а величина этих напряжений делает маловероятной переориентировку гидридов в условиях эксплуатации труб. Кроме того, при содержании водорода примерно 0,03 вес. % вряд ли существенно уменьшится пластичность трубы.

Если при определении срока службы канальных труб в реакторе с органическим теплоноси-

телем в качестве критерия принять величину напряжения, равную 1/3 предела прочности, при содержании водорода 0,025 вес. %, то при 400° С указанное содержание водорода может быть достигнуто в сплавах оженнит-0,5 и Zr — 2,5 вес. % Nb за 15 и 10 лет соответственно. Вместе с тем следует указать, что оценка срока службы при содержании водорода 0,025 вес. %, вероятно, является слишком осторожной, так как прочность оженнита-0,5 с содержанием водорода 0,05 вес. % при вне-реакторном испытании на внутреннее давление при температуре 400° С была такой же, как прочность ненаводороженного материала.

Чтобы подавить образование радиолитического кислорода с целью снижения коррозии и исключения появления Fe₂O₃ в реакторах с водой под давлением, обычно необходимо поддерживать в теплоносителе содержание растворенного водорода — 20—25 см³ на 1 кг воды. Показано [17], что содержание 5 см³ водорода в 1 кг уже достаточно, чтобы препятствовать ускорению окисления холоднодеформированных сплавов Zr + 2,5 вес. % Nb и циркалоевых труб. Увеличение содержания в воде растворенного водорода может повысить поглощение водорода оболочкой твэлов.

По техническим условиям для реакторов типа CANDU—PHW содержание растворенного газообразногодейтерия в теплоносителе должно быть в пределах не менее 5 см³ и не более 10 см³ дейтерия на 1 кг тяжелой воды (5 и 10 см³ водорода на 1 кг воды).

В кипящих реакторах подавление образования кислорода присутствующим водородом затруднено и окисление циркаля ускоряется. Холоднодеформированный сплав Zr — 2,5 вес. % Nb менее подвержен коррозии, а термобработанный сплав обычно окисляется в том же теплоносителе под облучением меньше, чем при вне-реакторных испытаниях. Выдержка холоднодеформированных труб из сплава Zr — 2,5 вес. % Nb в реакторах NPD и NRU подтверждает полезный эффект добавления аммония.

Потери металла, вызванные коррозией труб в реакторах с тяжелой водой под давлением и в кипящих легководных реакторах, составляют не более 5 · 10⁻³ мм/год [17]. Сплавы оженнит-0,5 и Zr — 2,5 вес. % Nb при 300—400° С в условиях испытания в органическом теплоносителе показали незначительную коррозию. Предполагается, что наводороживание и облучение должны оказать незначительное влияние на коррозию труб.

Внераекторная скорость коррозии в органическом теплоносителе при 400° С соответствует величине привеса 0,1 мг/дм² в день для ожогнита—0,5 и 0,27 мг/дм² в день для Zr—2,5 вес. % Nb, что эквивалентно потере металла 2·10⁻³ и 5·10⁻³ мм/год соответственно.

Высокотемпературные материалы для труб под давлением. Увеличение параметров теплоносителя и применение ядерного перегрева пара требуют создания коррозионностойких при высоких температурах циркониевых сплавов. Проводятся исследования материалов на циркониевой основе для труб под давлением с рабочей температурой 450° С и выше. Состав и свойства материалов представлены в табл. 2. Ведутся также исследования опытных сборок твэлов в оболочках из сплавов Zr + 2,5 вес. % Nb и Zr + 1 вес. % Cr + 0,1 вес. % Fe при температурах на поверхности оболочки до 500° С [14].

Радиационные повреждения материалов оболочек твэлов быстрых реакторов

Американская программа исследования сталей для быстрых реакторов, начатая в 1961 г. [19], предусматривала изучение механических свойств, длительной прочности и пластичности, ползучести и распухания некоторых нержавеющих сталей (304, 316 и 347). Основные опыты по облучению проводились в реакторе EBR-II. Использовались также ускорители тяжелых ионов для оценки влияния мощности дозы и высоких интегральных потоков на распухание.

Английская программа в общих чертах охватывает те же аспекты. Основные эксперименты по облучению ведутся в Англии на реакторе DFR в Дунпree и на ускорителях. Изменения механических свойств сталей 304 и 316, отра-

Результаты механических и коррозионных испытаний циркониевых сплавов [14]

Таблица 2

Состав сплавов, вес. %				Сечение захвата, см ² /см ³	Состояние материала	Механические свойства при 450° С			Коррозия в паре при 400° С (автоклав)	
Sn	Mo	Nb	Al			$\sigma_{0,2}$, МН/м ²	σ_b , МН/м ²	$\sigma_{общ}$, %	время, дни	привес, мг/дм ² ·день
3	1	—	—	0,0093	Ac + 23% деформации	400	450	16	—	—
					Закалка + старение	630	730	11	173	2275
3	0,5	1	—	0,0093	Ac + горячий прокат	—	—	—	194	1224
					Закалка + старение	590	680	12	173	1428
3	1	1		0,0098	Отпуск	430	520	17	33	545
					Закалка + старение	750	790	3	33	655
2	1	1,5	1	0,010	Отпуск	540	660	20	—	—
					Ac + старение	630	760	16	—	—
					Закалка + старение	860	960	4	33	> 2000
Циркалой-2				0,0087	Холодная деформация	280	300	12	194	107

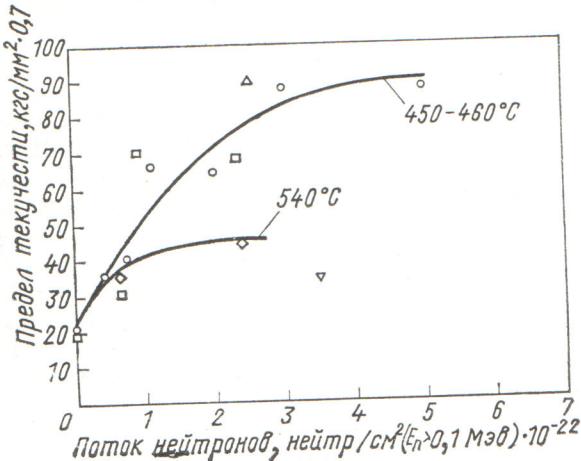


Рис. 5. Влияние облучения на предел текучести нержавеющих сталей типа 304 и 316 (испытание проводилось при температуре облучения):

Данные	Материал	Температура, °С
○ — [1]	304	450
□ — [3]	316	450
◊ — [3]	304	550
△ — [4]	304	450
▽ — [4]	304	550

женные в работе [19], представлены на рис. 5-8. Из них следует, что изменение предела текучести обнаруживает насыщение, причем соответствующая насыщению доза уменьшается с увеличением температуры. Темп уменьшения пластичности при статических испытаниях на удлинение примерно одинаков как для стали 304, так и для стали 316 (рис. 6). Однако запас пластичности при одинаковых дозах у последней выше. Облучение вызывает достаточно резкое падение длительной прочности (рис. 7), зависящей от интегрального потока; время до разрушения после облучения интегральным потоком $3 \cdot 10^{22}$ нейтр./см² ($E > 0,1$ МэВ) снижается более чем в 100 раз. Достаточно сильно падает и длительная пластичность (рис. 8). Следует отметить, что при повышении температуры облучения существует отчетливо выраженная тенденция к уменьшению изменений пластичности. Так, длительная пластичность стали 316 после облучения интегральным потоком $2 \cdot 10^{22}$ нейтр./см² при $370-540^\circ\text{C}$ составляет 0,5%, а при 760°C превышает 10%.

Испытания на длительную прочность при двухосном напряженном состоянии также обнаружили существенное влияние температуры облучения на время до разрушения и длительную пластичность. При этом существует корреля-

ция между двухосным и одноосным напряженным состоянием.

Результаты механических испытаний стали 316 после облучения в дунрейском реакторе [20] (в том числе при интегральных потоках до 10^{23} нейтр./см²) в общих чертах соответствуют представленным выше. Заслуживают внимания результаты испытания стали FV 548. Облучение этой стали в реакторе DFR при 300°C потоком $2,2 \cdot 10^{22}$ нейтр./см² в состоянии после закалки и старения, а также после холодной деформации на 20% не привело к заметному уменьшению неравномерного удлинения во время испытаний при температурах 650 и 700°C . Уменьшение удлинения замечено только при 750°C . При этом эффект выражен больше у закаленной и состаренной стали. Улучшенное по сравнению со сталью 316 поведение объясняется наличием в первичном зерне мелкодисперсных карбидов ниобия, являющихся ловушками для атомов гелия в холоднодеформированной стали и предотвращающими рост и агломерацию пузырьков по границам зерна в закаленном сплаве. Однако облучение этой стали в тепловом реакторе при температуре 600°C приводит к образованию

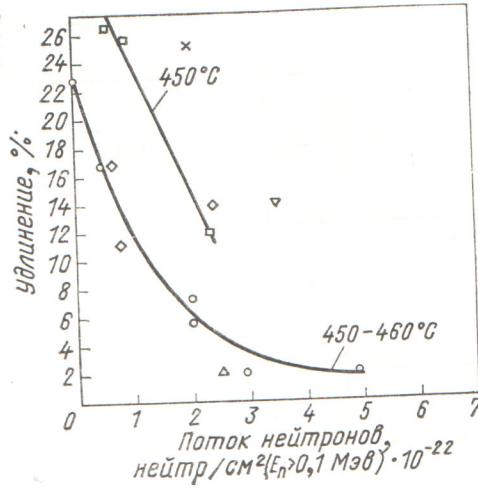


Рис. 6. Влияние облучения на пластичность нержавеющих сталей типа 304 и 316 (испытание проводилось при температуре облучения):

Данные	Материал	Температура, °С
○ — [1]	304	
□ — [3]	316	
◊ — [3]	304	
△ — [4]	304	
▽ — [4]	316	
× — ORNL	304-Ti	
		{ 450 }
		{ 550 }

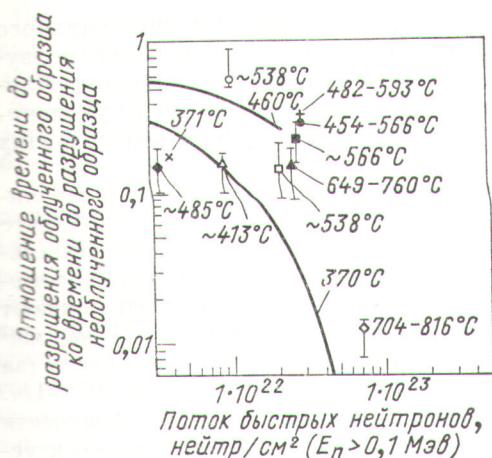


Рис. 7. Влияние потока быстрых нейтронов на длительную прочность отожженной нержавеющей стали типа 316 при 650°C ($17,5 \text{ кгс}/\text{м}^2$) и отожженной нержавеющей стали типа 304 при 600°C ($18,9 \text{ кгс}/\text{м}^2$).

карбидов ниobia во всей матрице, что сопровождается уменьшением пластичности.

Результаты испытания сплава типа никоник РЕ-16 еще раз подтверждают, что наиболее сильно подвержены высокотемпературному охрупчиванию сплавы, содержащие в качестве упрочняющей фазы соединение $\text{Ni}_3(\text{Ti}, \text{Al})$.

Если для несущих конструкций быстрых реакторов наиболее существенной является проблема высокотемпературного охрупчивания, то для таких деталей активной зоны, как сборки и тзвэлы, наиболее серьезной проблемой является размерная стабильность, а также релаксационная способность (ползучесть). В программу изучения распухания и ползучести включены как теоретическое рассмотрение, так и эксперименты по облучению в реакторе EBR-II с помощью бомбардировки ионами.

Были разработаны теоретические модели, основанные на классической диффузионной теории, а также на предположении, что рост пор обусловлен перенасыщением вакансиями. Рассмотрение приводит к выводу, что для роста пор необходимы следующие условия: 1) внедренные атомы должны захватываться стоками, отличными от пор, 2) должны существовать движущие силы, заставляющие мигрировать вакансии к порам, а внедренные атомы — к другим стокам. Самым приемлемым объяснением является более высокая эффективность захвата дислокаций внедренных атомов, чем вакансий. Если механизм роста пор сравнительно понятен, то механизм их зарождения встречает еще значительные затруднения.

Имеются попытки применить классическую теорию (для объяснения зарождения пор) образования зародышей, основанную на гомогенном зарождении. Однако она не полностью описывает процесс, вероятно, потому, что не учитывает влияния гелия на скорость зарождения (в особенности в нержавеющих стальях).

Сравнение численных расчетов по одной из моделей с экспериментальными данными для никеля и стали 316 в работе [19] дает вполне удовлетворительное согласие.

Проводилось экспериментальное изучение распухания сталей 304 и 316 в различных состояниях. В результате изучения стали 304 в закаленном и холоднодеформированном (20%) состояниях получены эмпирические уравнения распухания для этих двух случаев:

$$\frac{\Delta V}{V} (\%) = \varphi t^{2,05-27/\theta+78/\theta^2} [(t-40) \cdot 10^{-10}] \times \exp [-0,015(T) - 5100/T + 32,6],$$

где φt — общий интегральный поток, $\times 10^{-22}$; $\theta = T - 623$; T — в $^\circ\text{K}$;

$$\frac{\Delta V}{V} (\%) = 9 \cdot 10^{-35} \varphi t^{1,5} [4,028 - 3,712 \cdot 10^{-2} \times (T - 273) + 1,0145 \cdot 10^{-4} (T - 273)^2 - 7,879 \cdot 10^{-8} (T - 273)^3],$$

где φt — интегральный поток.

Последние исследования стали 316 в закаленном и деформированном на 27 и 50% состояниях, а также стали 304, деформированной

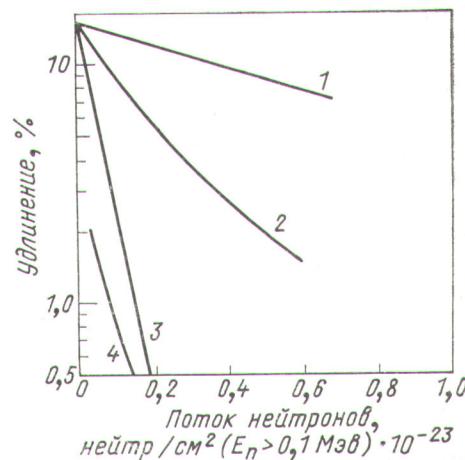


Рис. 8. Пластичность при ползучести отожженной нержавеющей стали типа 316 при 538°C и нержавеющей стали типа 304 при 600°C .

1 — типа 316, 760°C , [5]; 2 — типа 316, 650°C , [5]; 3 — типа 316, $370-540^\circ\text{C}$, 4 — типа 304, $370-460^\circ\text{C}$, [4].

на 30%, облученных при температурах 370—760° С и максимальном интегральном потоке $5 \cdot 10^{22}$ нейтр/см² ($E > 0,1$ Мэв), показали чрезвычайно сильное влияние состава и холодной обработки на распухание стали. Так, например, холоднодеформированная сталь типа 316 практически не распухала (или очень немного) во всех проведенных экспериментах.

Весьма наглядно влияние холодной деформации на распухание было продемонстрировано при облучении закаленной и холоднодеформированной стали типа 316 ионами углерода ($E \sim 20$ Мэв). Холодная деформация сдвигает максимум распухания в область более высоких температур.

Закаленная сталь типа 316 обнаружила распухание, однако заметно меньшее, чем можно было бы предсказать на основе уравнения, выведенного по данным испытания стали 304. Обнаруживается максимум распухания в области температур 425° С. Для стали 304 (50%-ная деформация) обнаруживается второй максимум распухания (которого нет для стали 316) при температуре 620° С.

Исследования распухания оболочек твэлов из сталей 316 и 347 после испытания интегральными потоками $4 \cdot 10^{22}$ и $7,4 \cdot 10^{22}$ нейтр/см² в реакторе EBR-II показали распухание 8,7% при $7,3 \cdot 10^{22}$ нейтр/см² и 520° С для стали 316 и 10,0% при аналогичных условиях для стали 347. Верхняя температурная граница существования распухания расположена, по-видимому, где-то выше 600° С. Исследования образцов, облученных при 680° С, не обнаружили присутствия пор в стали 304.

Исследования показывают влияние напряжений на рост пор. При этом обнаружены эффекты: рост полостей по границам зерен и пор под действием гидростатических растягивающих напряжений, а также появление гидростатической компоненты ползучести, которая в свою очередь приводит к увеличению объема.

Теоретические исследования показывают, что гидростатические напряжения создают движущую силу, стимулирующую движение вакансий к порам. Планируются эксперименты для проверки этих предположений.

Внутриреакторная ползучесть сталей является важным фактором, влияющим на работоспособность конструкций активной зоны. Теоретические исследования ползучести под облучением привели к разработке вычислительных программ, основанных на рассмотрении модели Виртмана. Полученные уравнения показывают возможность ускорения ползучести под облуч-

ением. Однако при увеличении интегрального потока возможно уменьшение скорости ползучести в связи с тем, что возникающие под облучением поры и дислокационные петли увеличивают число препятствий для переползающих дислокаций.

Испытания трубок из стали 304 под постоянным давлением в реакторе EBR-II в контакте с натрием при температуре 370° С, максимальной интенсивности 10^{15} нейтр/см²·сек и интегральном потоке $3 \cdot 10^{21}$ нейтр/см² подтверждают эти вычисления. При напряжении 21 кгс/мм² средняя скорость радиационной ползучести (за вычетом распухания) оказалась равной 10^{-6} 1/ч.

Аналогичные зависимости для ползучести приводятся в докладе [20] применительно к условиям работы реактора DFR. Проведенные испытания и экстраполяция показывают, что при интенсивности потока 10^{15} нейтр/см² ползучесть при температуре 300° С соответствует обычной термической ползучести при 650° С (для напряжений 5 и 10 Мн/м² в случае холоднодеформированной и закаленной стали соответственно). Однако термическая ползучесть в значительной степени зависит от напряжения и при больших напряжениях может превышать радиационную. Испытания стали 316 в реакторе PLUTO при напряжении 350 Мн/м², температуре 550° С и интенсивности потока $5 \cdot 10^{13}$ нейтр/см²·сек не обнаружили ускорения ползучести.

Анализ структурных изменений, происходящих под облучением в нержавеющих сталях, показывает, что характер этих изменений в достаточной мере коррелирован с макроскопическими изменениями свойств, а именно: температурными областями образования пор и распухания, числом и размерами пор, влиянием на них температуры и интенсивности, влиянием холодной обработки на число пор, их распухание и т. п.

Интересно отметить, что в температурной области существования распухания (до 600° С) наблюдаются дислокационные петли, являющиеся, по-видимому, стоками для внедренных атомов; при более высоких температурах имеется только дислокационная сетка.

Отмечается различие в распределении выделений в сталях 304 и 316. При температурах облучения ниже 700° С наблюдается образование кубоидальных карбидов $M_{23}C_6$ и пластинчатой сигма-фазы равномерно по телу зерен. При более высоких температурах наблюдаются только карбиды M_2C_6 , образующие непрерывные цепочки вдоль границ зерен.

Помимо радиационных повреждений отмечена важность изменений сталей в потоке натрия — уменьшение длительной прочности и пластичности как результат потери углерода, азота и бора. Потеря углерода сопровождается образованием сигма-фазы.

Облучение в реакторе не дает достаточно широких возможностей для выяснения влияния различных факторов (кинетика зарождения пор, высокие интегральные потоки, металлургические факторы и т. д.) на процесс распухания. Для восполнения этого пробела осуществляется широкая программа использования ускорителей положительных ионов для имитации радиационного повреждения высокими потоками нейтронов.

С помощью бомбардировки протонами изучалась зависимость распухания от числа смещений на атом. Эти эксперименты доказывают, что зарождение пор происходит на ранних стадиях облучения. Зависимость плотности пор от мощности дозы свидетельствует об увеличении интенсивности облучения с увеличением скорости зарождения пор, главным образом на ранних стадиях облучения (результаты получены при различной величине интегрального потока и не зависят от последнего). Помимо протонов использовались ионы N^{++} . При этом наблюдаемая картина качественно тождественна той, которая образуется при нейтронном облучении. Однако не ясно, существует ли ее количественная корреляция. Бомбардировка ионами используется также для изучения радиационной ползучести.

Некоторые вопросы влияния облучения на стали для корпусов реакторов и переходников соединения труб

В последнее время особое внимание обращено на изучение влияния химического состава на склонность стали к охрупчиванию в условиях облучения. Установлено отрицательное влияние содержания меди в стали. В работе [21] по исследованию слаболегированной перлитной стали с содержанием меди 0,6 и 0,15 вес. % (состав стали в вес. %: С 0,15; Mn 1; Ni 1,1 и Mo 0,3) показано, что после облучения дозой $3 \cdot 10^{19}$ нейтр./ cm^2 при $210^\circ C$ в стали с меньшим содержанием меди критическая температура хрупкости увеличивается на $120^\circ C$, в то время как в стали с большим содержанием меди при дозе облучения $2,7 \cdot 10^{19}$ нейтр./ cm^2 смещение критической температуры хрупкости составляет $165^\circ C$.

Несколько неожиданным является также то, что для основного металла после облучения дозой 10^{19} нейтр./ cm^2 при $300^\circ C$ смещение критической температуры хрупкости меньше, чем после облучения при $400^\circ C$. Кроме того, облучение дозой 10^{20} нейтр./ cm^2 при $300^\circ C$ вызвало смещение температуры хрупкости в металле шва на $300^\circ C$, а в основном металле — только на $50^\circ C$. Все это указывает на существенное влияние химического состава и структуры перлитных сталей на радиационную стойкость.

Сравнительное исследование радиационной стойкости хромистой стали марки 403 (12 вес. % Cr), которая была принята для изготовления переходников труб, и слаболегированной стали марки А-542 после облучения дозой $1 \cdot 10^{20}$ нейтр./ cm^2 показало, что хромистая сталь является менее радиационностойкой, так как смещение критической температуры хрупкости в ней больше, чем в стали А-542 [17]. Поэтому принято решение в канадских реакторах для изготовления переходников каналов использовать сталь марки А-542 (состав в вес. %: 2 Cr, 1 Mo, 0,5 Mn, 0,15 C).

ЛИТЕРАТУРА

1. G. Greenough et al. IV Женевская конференция (1971), доклад № 501 (Англия).
2. E. Rolstad, K. Cnuudsen. См. [1], доклад № 295 (Норвегия).
3. K. Videm et al. См. [1], доклад № 291 (Норвегия).
4. H. Mogard et al. См. [1], доклад № 314 (Норвегия).
5. W. Zinn et al. См. [1], доклад № 080 (США).
6. J. McAavan et al. См. [1], доклад № 158 (Канада).
7. G. Lowton et al. См. [1], доклад № 498 (Англия).
8. S. Rosen et al. См. [1], доклад № 069 (США).
9. H. Böhm et al. См. [1], доклад № 392 (ФРГ).
10. S. Djurle et al. См. [1], доклад № 315 (Швеция).
11. Takehiko Ishihara, Naohiro Igata et al. См. [1], доклад № 823 (Япония).
12. F. Hamburg et al. См. [1], доклад № 026 (Нидерланды).
13. P. Degeorne. См. [1], доклад № 275 (Бельгия).
14. L. Hawood et al. См. [1], доклад № 156 (Канада).
15. L. Aumüller et al. См. [1], доклад № 385 (ФРГ).
16. R. Hart et al. См. [1], доклад № 151 (Канада).
17. W. Evans, P. Ross-Ross, J. Lesurff. См. [1], доклад № 159 (Канада).
18. R. Nicols et al. См. [1], доклад № 502 (Англия).
19. T. Claudson et al. См. [1], доклад № 067 (США).
20. D. Harries et al. См. [1], доклад № 499 (Англия).
21. F. Harzgarrolli et al. См. [1], доклад № 393 (ФРГ).