

## Разработка тепловыделяющих элементов для энергетических реакторов на быстрых нейтронах

И. С. ГОЛОВНИН, Ю. К. БИБИЛАШВИЛИ, Т. С. МЕНЬШИКОВА

УДК 621.039.54

Основными этапами развития в СССР атомной энергетики с реакторами на быстрых нейтронах, охлаждаемых натрием, являются: успешная эксплуатация реактора БР-5, реконструирующегося сейчас в реактор БР-10; разработка и пуск реактора БОР-60, вышедшего в 1971 году на номинальную мощность; завершение строительства опытного промышленного реактора БН-350; создание реактора БН-600 [1—4]. Экспериментальные данные, накопленные в процессе выполнения этой программы, позволяют приступить к разработкам и созданию крупных промышленных установок с реакторами на быстрых нейтронах, оптимальные единичные электрические мощности которых, по оценкам ученых многих стран, должны находиться в пределах 1000—2000 Мвт. Практически все узлы натриевых быстрых реакторов оказались трудными в осуществлении из-за их технической новизны и отсутствия достаточного опыта в смежных областях техники. Для создания этого вида установок необходимы мощные натриевые насосы и теплообменники, парогенераторы, прочные крупные реакторные корпуса, турбогенераторы и т. д.

Серьезных усилий требуют разработки твэлов для реактора на быстрых нейтронах. Исследования свойств ряда топливных материалов в отношении их ядерно-физических, химико-металлургических и технологических характеристик, а также изучение ряда возможных конструктивных материалов к настоящему времени позволили определить направление разработок твэлов для активной зоны и зоны воспроизводства натриевых быстрых реакторов на ближайшие 10—15 лет. Нержавеющая сталь аустенитного класса является наиболее подходящим материалом для оболочек твэлов и в ближайшее десятилетие будет основным конструкционным материалом.

В первую очередь в быстрых реакторах применяется окисное урановое и уран-плутониевое горючее, благодаря его хорошей совместимости с конструкционными материалами и натриевым теплоносителем, хорошей радиационной стойкости и простоты технологии производства. Уместно отметить, что окисное направление развития быстрых реакторов родилось в Советском Союзе на основе опыта работы реактора БР-5 и было принято в качестве основного всеми европейскими странами, включая Францию, Англию и Италию, а в настоящее время и США. Использование на первых порах окисного горючего позволяет обойти ряд трудностей, связанных с созданием надежных в работе твэлов, а также ускоряет накопление опыта эксплуатации реакторов на быстрых нейтронах и данных для обоснования проектов крупных энергетических систем. Этим будет облегчена возможность перехода в дальнейшем на карбидное, нитридное или карбонитридное горючее и, наконец, на самое заманчивое — металлическое (в случае благоприятных научных решений).

Разработка конструкций окисных твэлов, позволяющих достигать выгорания до 10% тяжелых атомов при линейных удельных нагрузках до 600 Вт/см и рабочих температурах оболочки порядка 700°С, явилась сама по себе трудной задачей. Отсутствие экспериментальных установок, позволяющих создать фактические условия работы твэлов (облучение интегральным потоком быстрых нейтронов более  $10^{23}$  н/см<sup>2</sup>, динамика выгорания и т. д.), привело к несколько запоздалому открытию таких явлений, как иодно-цеиевое взаимодействие сердечника с оболочкой, охрупчивание и растрескивание стали при высоких дозах облучения. Количественно эти явления еще недостаточно изучены, и пока нет возможности осуществить

полную корректировку ранее разработанных проектов. Однако их наличие не остановило принятого ранее окиснонатриевого направления развития реакторов. Проведенные исследования позволили понять процессы, происходящие в сердечниках окисных твэлов при глубоком выгорании, огромных температурных градиентах, включая механическое взаимодействие сердечника с оболочкой, и создать динамическую модель этих процессов, заложенную в основу расчета твэлов.

Наши основные представления заключаются в следующем [5—7].

1. Окисное горючее после выгорания более 3% тяжелых атомов и нагрузках 500—600  $\text{вт/см}$  практически полностью (более чем на 80—90%) освобождается от газовых осколков деления, в связи с чем его распухание минимально в сравнении с другими видами топлива. Объемное распухание двуокиси урана и смешанной окиси урана и плутония составляет в среднем 1% на 1% выгорания, а двуокиси плутония при нагрузках ~200—250  $\text{вт/см}$  до 1,5% на 1% выгорания.

2. При температурах выше 900° С окисное горючее разупрочняется. Пластичность его резко возрастает с температурой. Облучение усиливает этот процесс. В компактном окисном сердечнике тонкого стержневого твэла, работающего при высоких линейных нагрузках, прочным остается лишь внешний слой величиной 0,15—0,2 мм, который в основном и оказывает механическое воздействие на оболочку.

3. Вследствие высоких температурных градиентов в процессе подъема мощности (или при изменении мощности реактора) в компактном сердечнике возникают радиальные трещины, которые при нагрузках выше ~350  $\text{вт/см}$  «залечиваются» при работе твэлов в стационарном режиме по механизму испарение — конденсация с переносом массы в более холодную зону сердечника. В результате радиального массопереноса исходный зазор между оболочкой и сердечником в рабочем состоянии может довольно быстро ликвидироваться еще до того, как придет в действие механизм «осколочного» распухания. В холодном состоянии зазор определяется разницей термического расширения материалов.

4. В процессе работы окисный сердечник претерпевает структурные изменения, приводящие к образованию нескольких характерных зон: внешней зоны с исходной структурой, зоны равновесных зерен, зоны столбчатых зерен.

Границы формирования их соответствуют радиальному распределению температур, определяющему радиальное изменение механических свойств материала сердечника. Структурные изменения связаны с возникновением и миграцией преимущественно крупных пор,двигающихся внутрь, в зону высоких температур, следствием чего является образование центрального отверстия в сердечнике или увеличение его в начальный период облучения, если оно было предусмотрено конструкцией. Накапливающиеся твердые осколки относительно мало влияют на структурные изменения вплоть до 10% выгорания.

5. Наружный прочный слой окисного сердечника должен иметь равномерно распределенную исходную пористость, способную компенсировать распухание этого слоя при накоплении осколков деления. Механизм этого процесса может быть объяснен возникновением и диффузией вакансий в микрообластях термических пиков, которые возникают при затормаживании осколков деления. Минимальная величина исходной пористости определяется требуемым выгоранием. При этом считается, что накопление твердых осколков деления приводит к объемному распуханию, не превышающему 0,4% на 1% выгорания.

6. Средняя эффективная плотность горючего в сечении твэла, подсчитанная с учетом внутренней пористости таблеток, центрального отверстия в сердечнике и зазоров, должна быть ограничена соответствующей для данной конструкции максимальной величиной, чтобы предотвратить плавление внутренних областей сердечника с последующим осевым переносом массы.

7. Энергонапряженность твэла ограничивается величиной, при которой не наступает расплавления центральной части сердечника в течение кампании. При этом учитывается сокращение диаметра центрального отверстия сердечника в процессе распухания при сдерживающем действии оболочки, что проявляется к концу кампании, а также снижение температуры плавления двуокиси при зашлаковывании осколками деления.

8. Распухание стали в нейтронном поле существенно изменяет картину деформационного и напряженного состояния оболочки твэла. Оценки, проведенные для расчетной модели, согласно которой скорость распухания сердечника принимается не зависящей от степени его механического взаимодействия с оболочкой, показывают, что распухание стали благоприятно

сказывается на работоспособности центральных твэлов пакета. Оболочка этих твэлов как бы «убегает» от сердечника, и механические нагрузки падают. У пристеночных твэлов пакета из-за неравномерности температуры по периметру оболочки возникают дополнительные напряжения как результат неравномерного расширения стали. Величина этих напряжений зависит от температурной «розетки». Поэтому желательны конструктивные меры, снижающие неравномерность температур по периметру пристеночных твэлов. С этой целью в советских реакторах в пристеночные ячейки пакета введены вытеснители [6].

Изложенные выше представления могут быть целиком перенесены на работу твэла с виброуплотненным сердечником из порошка двуокисного горючего. Отличается лишь начальный период облучения, в течение которого происходит процесс спекания порошка в компактный стержень с центральным отверстием. Для таких твэлов первоначальный выход реактора на мощность необходимо осуществлять по специальной программе, обеспечивающей формирование втулочной геометрии сердечника, без достижения температуры плавления.

Расчет запаса прочности оболочки производится с учетом термических и механических (от газового давления и расширяющего сердечника) напряжений. При этом учитывается длительная прочность и длительная пластичность материала, а также релаксация напряжений [6].

Конструкция твэлов активной зоны реактора БН-350, предназначенных для первой загрузки, разработана до того, как методы расчета и проектирования окисных твэлов были сформулированы окончательно. Однако работоспособность ее до 5% выгорания была проверена путем прямого эксперимента в натриевой петле реактора МИР-2 и на реакторе БР-5. Конструкция твэла ясна из рис. 1 и представляет собой трубку из нержавеющей стали диаметром 6,1 мм с толщиной стенки 0,55 мм, заполненную втулками из спеченной двуокиси урана, образующими сердечник длиной 1060 мм. Средняя эффективная плотность в сечении твэла равна 8 г/см<sup>3</sup>. Номинальный исходный диаметральный зазор между оболочкой и сердечником составляет 0,3 мм. По концам оболочка заварена аргоно-дуговой сваркой. Газосборника практически нет. Свободный объем в твэле образуют: центральное отверстие сердечника, зазор между оболочкой и сердечником и небольшое пространство в верхней части оболочки (20 + 25 мм), играющее роль компенсатора

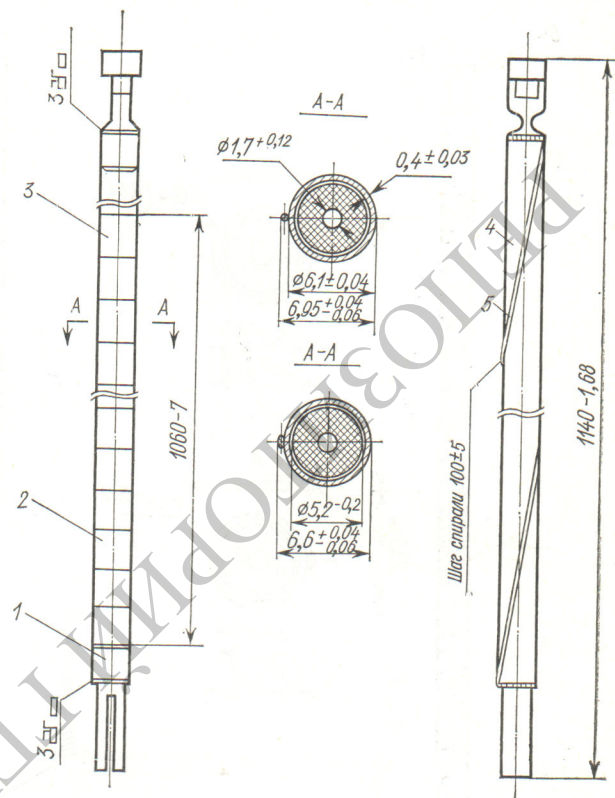


Рис. 1. Конструкция твэла активной зоны первой загрузки реактора БН-350:

1 — верхний наконечник; 2 — втулка; 3 — нижний наконечник; 4 — оболочка; 5 — проволока.

термического расширения с учетом допуска на высоту сердечника. Дистанционирование твэлов в пучке осуществляется навитой проволокой.

Расчетное давление газов к концу кампании внутри твэла достигает 140 атм, однако запас прочности оболочки остается выше 1,0 при максимальной температуре оболочки около 680°С в начале кампании и 650°С в конце. Твэлы собираются в шестигранные пакеты по 169 штук в каждый.

Предполагается во второй загрузке реактора БН-350 использовать более совершенную конструкцию твэлов активной зоны, представленную на рис. 2. Диаметр твэла здесь увеличен до 6,9 мм, что дает возможность в шестигранную трубу того же размера разместить пучок из 127 твэлов при сохранении загрузки по делящемуся изотопу. Предусмотрены газовая полость в нижней, более холодной части твэла и совмещение нижнего торцевого отражателя

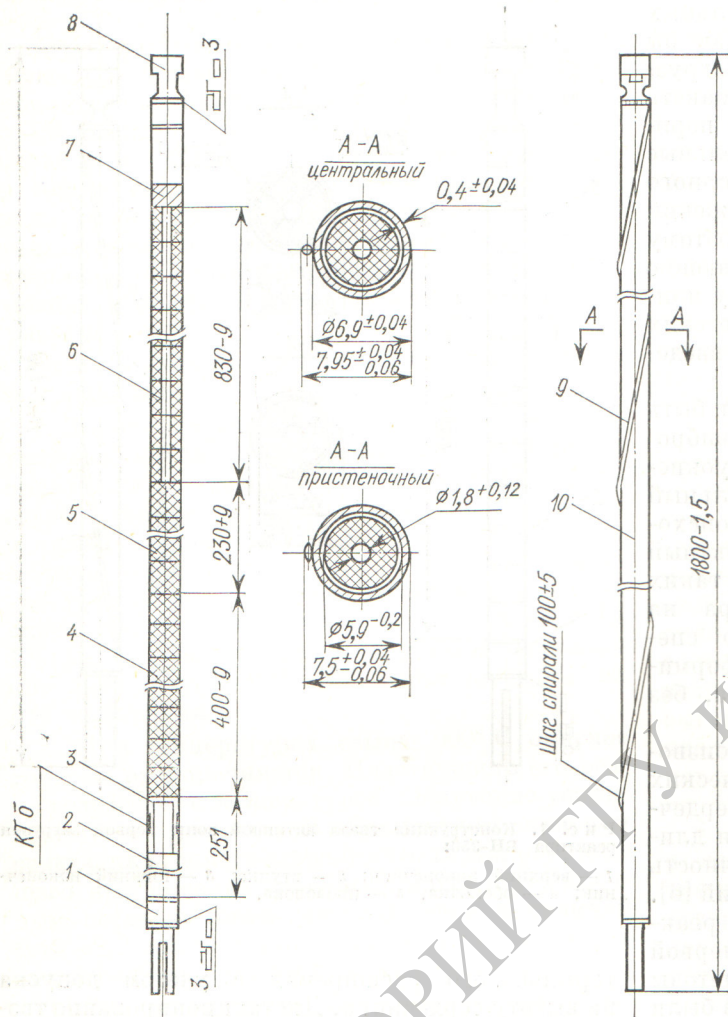


Рис. 2. Конструкция твэла активной зоны второй загрузки реактора БН-350:

1 — нижний наконечник; 2 — газовая полость; 3 — стакан; 4 — брикет нижнего торцевого экрана; 5 — брикет активной зоны; 6 — втулка; 7 — пористая пробка; 8 — нижний наконечник; 9 — дистанционирующая проволока (лента); 10 — оболочка.

с топливным сердечником в одной оболочке. Это позволило существенно снизить давление осколочных газов в оболочке, которое не превышает 100 атм при 10% выгорания тяжелых ядер. Некоторое повышение средней температуры сердечника снижает его механическое воздействие на оболочку при распухании. Как это было подтверждено на опытных образцах, облученных в реакторе СМ-2, разработанная конструкция твэла оказалась работоспособной до выгорания 100 000 Мвт·сутки/т  $UO_2$ .

Следует отметить, что нижняя часть топливного сердечника высотой 230 мм, непосредствен-

но примыкающая к торцевому отражателю (см. рис. 2), выполнена не из полых, а из сплошных брикетов. Достижаемое этим увеличение эффективной плотности горючего в сечении твэла приводит к повышению температуры поверхности брикетов и снижению механического воздействия сердечника на оболочку в этом участке. На рис. 3 приведено распределение окружных деформаций оболочки твэла второй загрузки по длине. Увеличение эффективной плотности горючего в нижней части твэла с 75 до 86% от теоретической снижает деформацию оболочки к концу кампании с 2,3 до 1,8%, что значительно повышает ресурс его работы [7, 8].

Один из вариантов конструкции твэла предусматривал совмещение в одной оболочке как нижних, так и верхних торцевых отражателей. Однако использовать эту конструкцию в реакторе БН-350 не удалось вследствие существенного увеличения гидравлического сопротивления пакета. Эта идея применена в разрабатываемой в настоящее время конструкции твэла реактора БН-600, один из вариантов которой представлен на рис. 4. Конструкция рассчитана на выгорание 10% по тяжелым ядрам, в ней может использоваться топливный сердечник как из двуокиси урана, так и из смеси  $(UPu)O_2$ . Оболочка имеет большую газовую полость (800 мм) и «утепленную» область топливного сердечника (90 мм) для снижения окружных деформаций оболочки. Образцы твэлов, близкие к описанной конструкции, в настоящее время испытываются в реакторе БОР-60. В таблице приводятся сравни-

тельные характеристики описанных конструкций твэлов.

На работоспособность и рабочие характеристики твэлов в значительной мере оказывает влияние качество приготовления топливного сердечника. В производственных процессах изготовления сердечников твэлов, принятых в СССР и других странах, заложен метод «таблетизирования». В настоящее время разработаны достаточно производительные пресс-автоматы, обеспечивающие низкие затраты на производство [5, 6, 9]. Хотя шихтовый материал, предназначенный для переработки пресс-

## Сравнительные характеристики конструкций ТВЭЛОВ

Таблица

| Характеристики                                             | ТВЭЛ БН-350   |                | ТВЭЛ БН-600    |
|------------------------------------------------------------|---------------|----------------|----------------|
|                                                            | основ-<br>ной | II вариант     |                |
| Диаметр, мм                                                | 6,1           | 6,9            | 6,9            |
| Длина активной части, мм                                   | 1060          | $230+830=1060$ | $90+660=750$   |
| Максимальная температура оболочки, °С*                     | 680           | 700            | 710            |
| Максимальная температура топлива, °С*                      | 1800          | 2500           | 2500           |
| Максимальная тепловая нагрузка, Вт/см                      | 450           | 530            | 530            |
| Максимальная глубина выгорания, %                          | 5             | 10             | 10             |
| Давление газов в конце кампании, атм                       | 140           | 100            | 40             |
| Максимальная** окружная деформация оболочки, %             | 0,25          | 1,8            | 1,6            |
| Запас прочности оболочки (по напряжениям) в конце кампании | 1,4           | 1,37 (1,05***) | 1,55 (1,06***) |

\* Температуры указаны для горячих точек.

\*\* Расчеты проделаны для свойств топливных и конструктивных материалов без учета влияния на них реакторного облучения.

\*\*\* Время до разрушения уменьшено в 100 раз по сравнению со свойствами стали без учета влияния на них реакторного облучения.

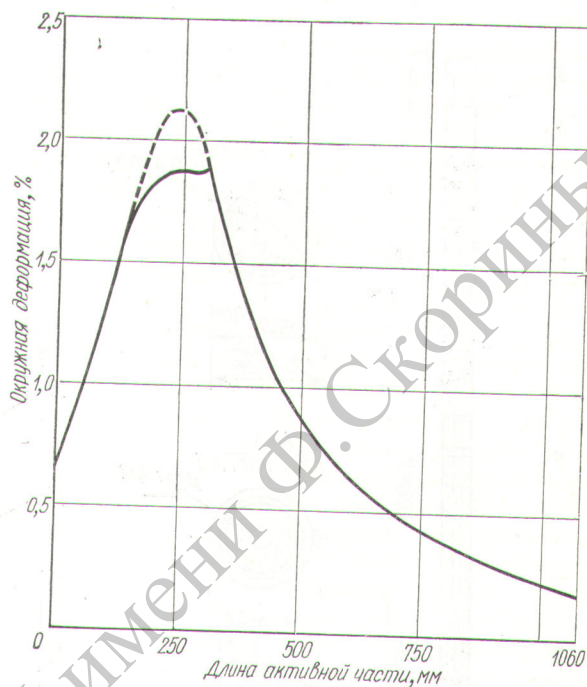


Рис. 3. Окружная деформация оболочки по длине ТВЭЛА активной зоны реактора БН-350, в котором эффективная плотность на длине 230 мм от нижнего торца активной части ТВЭЛА: — — — — 75% от теоретической; — — — — 86% от теоретической.

Положительным в процессе «таблетизирования» является возможность использования пресс-автоматов со смазывающимся пресс-инструментом, что позволяет прессовать «сырые» таблетки из порошка практически без добавления пластификатора. Это еще более улучшает точность изготовления таблеток, их качество и позволяет повысить загрузку горючего в ТВЭЛ. Оптимальной является безусловно та технология, при которой в исходный порошок вносится минимальное количество веществ, подлежащих удалению в процессе спекания.

Следует сказать несколько слов о чистоте исходного продукта. Разработчик и потребитель при выборе кондиции двуокиси урана чаще всего исходят из возможностей поставщика, но стараются использовать наиболее чистый продукт. В принципе поставщик может производить продукт любой степени чистоты, и для него может оказаться экономически выгодной глубокая степень очистки. Повышенная загрязненность исходной двуокиси урана может сказаться на качестве производимых таблеток, особенно при наличии легколетучих примесей,

автоматом, требует более тщательной подготовки (чтобы обеспечить постоянство насыпного веса, повторяемость размеров и свойств единичных изделий), в нем допустимо содержание существенно меньших количеств пластификатора, чем в порошках, используемых в других методах формирования окисных сердечников. Это обстоятельство обеспечивает более высокие качества продукта после спекания: равномерное распределение плотности, правильную геометрическую форму, меньшие отклонения размеров от номинальных. Последнее позволяет устранить операцию шлифования таблеток, используя ее лишь для исправления возможного брака, появляющегося, например, при износе пресс-инструмента.

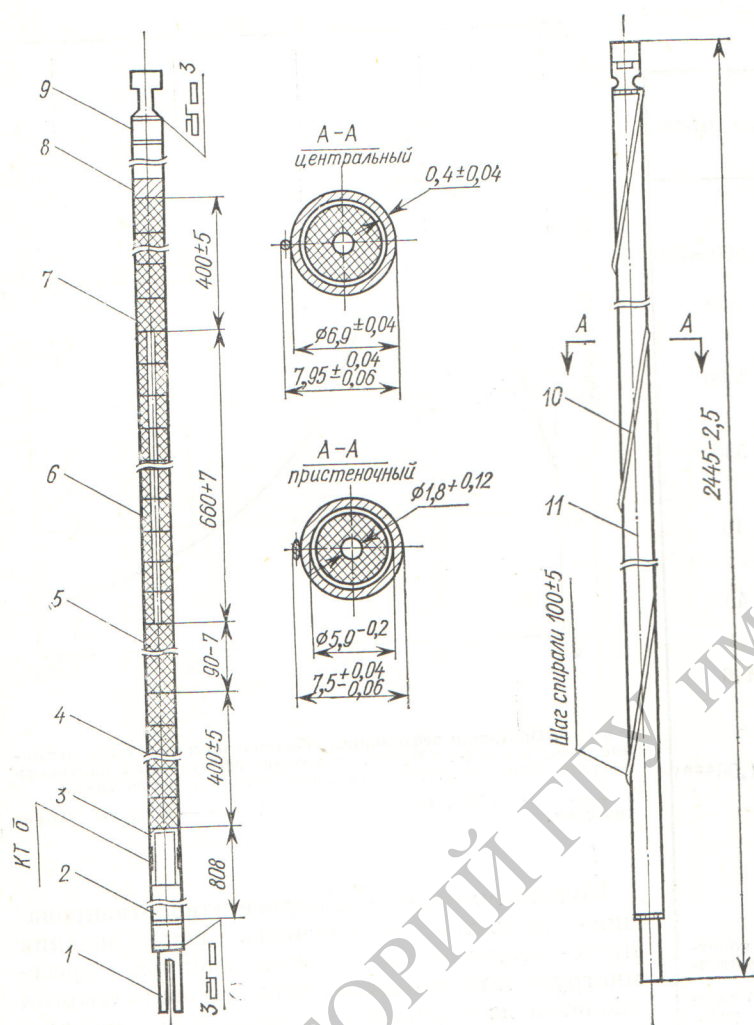


Рис. 4. Вариант конструкции твэла активной зоны реактора БН-600:

1 — нижний наконечник; 2 — газовая полость; 3 — стакан; 4 — брикет нижнего торцевого экрана; 5 — брикет активной зоны; 6 — втулка; 7 — брикет верхнего торцевого экрана; 8 — пористая пробка; 9 — верхний наконечник; 10 — дистанционирующая проволока (лента); 11 — оболочка.

на емкости горючего по тяжелым атомам и на работоспособности твэлов. Однако не все примеси ухудшают работоспособность сердечников твэлов, а наличие общей загрязненности до определенного содержания влияет на свойства топлива незначительно. Исследованиям зависимости технологических свойств и радиационной стойкости твэлов от чистоты исходного продукта уделено мало внимания, в то время как это один из путей удешевления топливного цикла.

Другим аспектом вопроса качества и экономичности производства керамических сердеч-

ников является выбор пластификатора. В нашей практике наиболее распространенными связующими веществами являются водные растворы высокомолекулярных спиртов. Пластификаторы такого типа позволяют использовать более простую технологическую аппаратуру. Однако они не являются оптимальными, по меньшей мере в двух отношениях: во-первых, требуют выбора довольно узких пределов давления прессования и, во-вторых, затягивают во времени процесс спекания в связи с трудным удалением влаги.

Более выгодными являются неводные пластификаторы: высокомолекулярные жирные кислоты, их соли (стеараты, беханаты), особенно если ставится задача получения заданной равномерной исходной пористости в спекшем материале [10]. Связывающие свойства этих веществ проявляются уже при небольших добавках к шихте, благодаря чему качество продукции может быть улучшено.

Процесс спекания является важнейшей технологической операцией получения изделий из компактной двуокиси урана. Он может быть осуществлен как в вакууме, так и в различных газовых средах. Наиболее распространено спекание в водородсодержащих средах, обеспечивающее достаточно высокую стабильность размеров и свойств таблеток (плотность, стехиометрический состав), а также гарантирующее низкое содержание углерода в продукте.

В первых загрузках энергетических реакторов на быстрых нейтронах БН-350 и БН-600 в качестве топливного материала активной зоны будет использоваться двуокись урана. После освоения реакторов этого типа в активную зону будет загружаться окисное смешанное горючее ( $UO_2 + 15 - 20\% PuO_2$ ). Для изготовления твэлов этого типа также предполагается применить метод прессования таблеток.

Технологический процесс изготовления твэлов с сердечниками из смешанного окисного горючего имеет некоторые особенности. Первая особенность относится к способу приготовления

исходного порошка. Такой порошок может быть получен либо путем механического смешивания порошков окисей урана и плутония, либо путем совместного осаждения их из растворов [11]. При выборе той или иной схемы следует учитывать требование равномерности распределения плутония в топливном сердечнике. Твердый раствор двуокиси плутония и двуокиси урана, образующийся в процессе спекания таблеток, спрессованных из механически смешанных порошков, может отличаться существенной неравномерностью распределения компонент в малых объемах, что приведет к заметному доплеровскому коэффициенту реактивности системы. Дополнительные технологические операции, выравнивающие распределение концентраций в таком горючем, могут вызвать удорожание процесса. В процессе совместного осаждения и последующей прокатки непосредственно образуются кристаллиты твердого раствора окисей, и равномерность распределения делящейся компоненты в таких порошках очень высока. Следует иметь в виду, что использование соосажденных смесей не требует полного разделения урана и плутония при регенерации отработавших твэлов, что может благоприятно сказаться на стоимости внешнего топливного цикла. Конечно, в начальной фазе производства выбор метода приготовления смесей окислов может определяться существующими возможностями действующих в стране предприятий, но при установившемся процессе многократной регенерации горючего, по-видимому, предпочтительнее окажется метод химического соосаждения.

Вторая особенность процесса изготовления таблеток окисного смешанного горючего состоит в различии сродства урана и плутония к кислороду и водороду. Последнее обстоятельство приводит к существенному влиянию среды на процессы спекания. При спекании в восстановительной атмосфере в сердечнике образуется двухфазная структура твердых растворов, причем концентрация фаз зависит от режимов спекания. Однофазная структура может быть получена спеканием в окислительной среде, однако необходимость такой обработки для улучшения радиационной стойкости горючего должна быть подтверждена экспериментально.

Третья особенность производства смешанных окисей заключается в высокой токсичности про-

дукта. Существующие сейчас участки изготовления твэлов с сердечниками, содержащими двуокись плутония [10], оборудованы перчаточными камерами и предусматривают ручное ведение процесса. Однако при крупном промышленном производстве плутониевого топлива требования безопасности могут внести существенные коррективы и привести к необходимости создания частично или полностью дистанционного производства, в особенности при многократной регенерации горючего. Понятие дистанционности обычно ассоциируется с удорожанием производства. С нашей точки зрения разумная механизация и автоматизация технологических процессов будет выгодна в крупном производстве плутониевого горючего и при достаточно отработанной аппаратуре позволит исключить ручной труд, допустив лишь кратковременные ручные операции при устранении неисправностей или замене оборудования. Последнее снимает требования высокой степени надежности, долговременности и безотказности действия, которые могут быть предъявлены к дистанционно управляемому оборудованию, перерабатывающему вещества с биологически опасным уровнем радиации.

Поступила в Редакцию 14/IX 1972 г.

## ЛИТЕРАТУРА

1. А. И. Лейпунский и др. (СССР). Симпозиум СЭВ «Состояние и перспективы работ по созданию АЭС с реакторами на быстрых нейтронах». Т. 1. Обнинск, 1967, стр. 249.
2. А. И. Лейпунский и др. Там же, стр. 123.
3. А. И. Лейпунский и др. «Атомная энергия», 30, вып. 2, 165 (1971).
4. А. И. Лейпунский и др. «Атомная энергия», 25, вып. 5, 380 (1968).
5. И. С. Головин и др. Доклад на франко-советском симпозиуме «Разработка твэлов для реактора BOR-60». Кадараш, 1970.
6. А. И. Лейпунский и др. Доклад на IV Женевской конференции, № 49/P/460, 1971.
7. И. С. Головин и др. «Атомная энергия», 30, вып. 2, 216 (1971).
8. R. Klipot, A. Smolders. Powder metallurgy, 12, 24, 305 (1969).
9. М. Батлер и др. Доклад М 88/33 на Симпозиуме по использованию плутония в качестве реакторного топлива. Брюссель, 1967.
10. Э. А. Эванс и др. Доклад США P/236 на III Женевской конференции по мирному использованию атомной энергии. Женева, 1964.
11. C. Sory et al. J. of Nuclear Mat., 35, 267 (1970)