

ОСОБЕННОСТИ ОБРАЗОВАНИЯ ГИДРИДОВ В ОБОЛОЧКАХ НЕГЕРМЕТИЧНЫХ ТВЭЛОВ ВВЭР ВЫСОКОГО ВЫГОРАНИЯ

Л. В. Киреева, А. В. Горячев, И. А. Иванова, И. Н. Волкова

ОАО «Государственный научный центр –
Научно-исследовательский институт атомных реакторов»

Введение

При эксплуатации реакторов ВВЭР неизбежны случаи разгерметизации оболочек твэлов. Разгерметизация твэлов вызывает повышение активности в первом контуре вследствие выхода продуктов деления и может привести к внеплановой остановке реактора или к дополнительной задержке при плановой остановке, связанной с поиском негерметичных ТВС. Как внеплановые остановки, так и задержка перегрузки активной зоны приводят к снижению коэффициента использования установленной мощности реактора, что отрицательно влияет на экономические показатели АЭС.

В связи с этим возникают две важные задачи: оценка возможности работы реактора с негерметичным твэлом, по крайней мере, до очередной плановой остановки и ускорение поиска негерметичной ТВС.

С целью сокращения времени поиска негерметичной ТВС разработан код РТОП-СА, при помощи которого по данным системы контроля активности теплоносителя реактора можно примерно определить выгорание ТВС, в которой произошла разгерметизация твэла, еще до остановки реактора. Эта информация используется для целенаправленного поиска негерметичной ТВС в группе ТВС с выгоранием, близким к предсказанному кодом, что сокращает длительность данной операции.

Оценка возможности продолжения эксплуатации негерметичной ТВС обычно проводится по результатам послереакторных исследований разгерметизировавшихся твэлов.

В результате таких исследований оцениваются время и режим эксплуатации негерметичных твэлов, которые позволят избежать обширного разрушения оболочки и чрезмерного загрязнения теплоносителя.

Для отладки и верификации расчетных моделей кода РТОП-СА в реакторе МИР проведен эксперимент, моделирующий облучение высоковыгоревшего твэла со сквозным дефектом оболочки при проектных параметрах эксплуатации в реакторе ВВЭР-1000.

Основной целью испытаний было исследование выхода продуктов деления при работе негерметичного твэла.

Для оценки состояния твэла после испытаний проведены его исследования в защитных камерах. Кроме оценки состояния исходного дефекта и распределения продуктов деления в топливе, необходимых для интерпретации

данных внутриреакторных измерений, значительный интерес в этих исследованиях представляла оценка состояния топливного сердечника и характера гидрирования оболочки твэла с высоким выгоранием. Этот интерес продиктован тем, что, несмотря на достаточно большое количество проведенных исследований негерметичных ТВС, в настоящее время отсутствуют данные о поведении твэлов ВВЭР, разгерметизировавшихся при выгорании 60 МВт·сут/кгU. При этом выгорании исчезает зазор топливо-оболочка. В связи с этим возникает вопрос о применимости модели образования вторичного дефекта, в которой изменение состава газовой среды в зазоре топливо-оболочка рассматривается как основной процесс, приводящий к деградации оболочки негерметичного твэла.

В данной работе приведены результаты исследования структуры топлива и оболочки испытанного твэла. Проведено сравнение выявленных особенностей поведения твэла с высоким выгоранием топлива с существующей моделью образования вторичного дефекта оболочки.

Параметры и условия испытаний экспериментального твэла

Экспериментальный твэл (рис. 1) состоял из фрагмента штатного твэла ВВЭР–1000, облученного до выгорания 60 МВт·сут/кгU, к верхней части которого через переходную втулку был приварен отрезок необлученной оболочки из сплава Э110. С торцов твэла приварены концевые детали. Искусственный дефект был создан в центре необлученной трубки в виде сквозного отверстия диаметром 1 мм. Через дефект и центральный канал диаметром 2 мм в переходной втулке в течение эксперимента теплоноситель поступал в твэл, а продукты деления выходили в теплоноситель.

Твэл был облучен в реакторе МИР в течение 20 суток при максимальной линейной мощности 150 Вт/см.

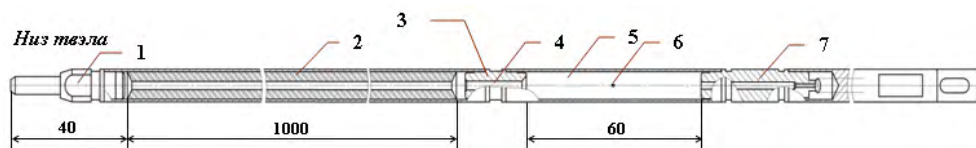


Рис. 1. Схема экспериментального твэла: 1 – нижняя концевая деталь; 2 – топливный сердечник; 3 – переходная втулка; 4 – центральный канал; 5 – необлученная трубка, 6 – искусственный дефект; 7 – верхняя концевая деталь

Результаты послереакторных исследований

При осмотре твэла не выявлено изменения внешнего вида поверхности оболочки. В результате измерений диаметра, гамма-сканирования и рентгено-радиографии твэла не обнаружено деформации оболочки и разрушений топливного сердечника.

Исследования структуры топлива и оболочки проведены в сечениях: 70, 450, 850, 900 и 950 мм по высоте топливного сердечника. В продольном сече-

нии 920–935 мм исследовано состояние стыка топливных таблеток. По результатам исследования были выявлены следующие особенности поведения высоковыгоревшего твэла:

Гидрирование оболочки. В сечениях 70, 850 и 900 мм на внутренней поверхности оболочки было обнаружено образование плотных гидридов (рис. 2). Такие гидриды наблюдались на участках выхода к оболочке радиальных трещин топливной таблетки.

В большинстве случаев на участках образования гидридов оксидная пленка на внутренней поверхности оболочки не имела разрывов, которые могли быть выявлены оптической микроскопией (рис. 2,б).

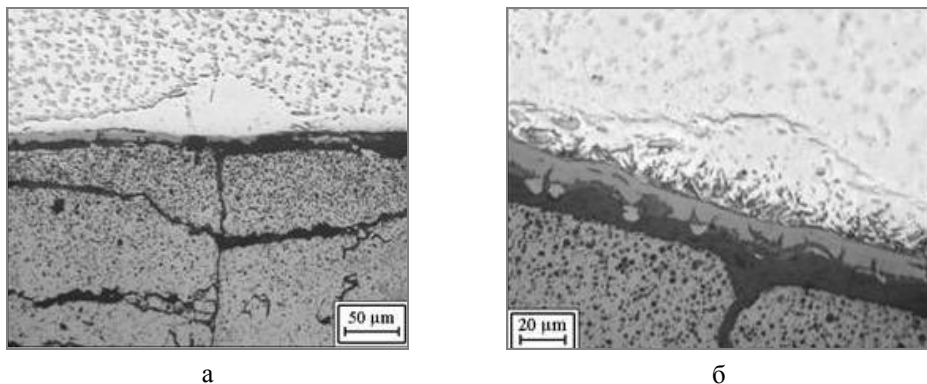


Рис. 2. Образование гидридов на внутренней поверхности оболочки (сечение 70 мм): а – с разрывами в оксидной пленке; б – с плотной оксидной пленкой

Окисление и газовое распухание топлива. В верхней части топливного сердечника (до сечения 850 мм) обнаружено окисление поверхности центрального отверстия и краев радиальных трещин (рис. 3,а).

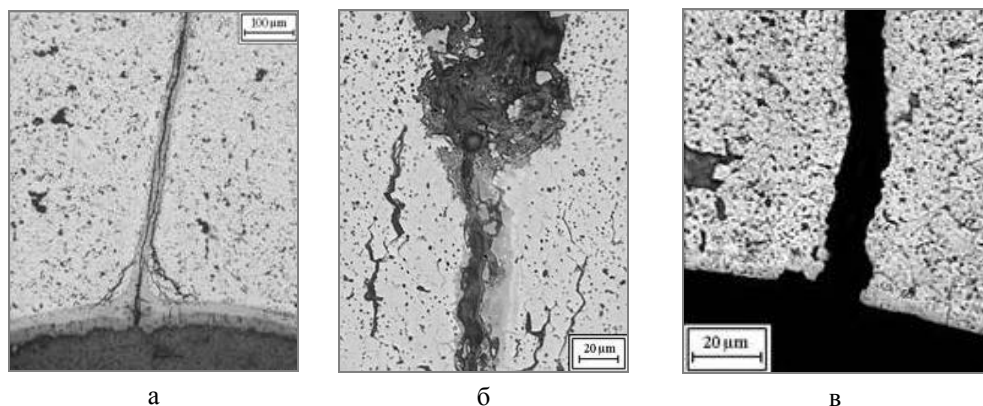


Рис. 3. Структура топлива после испытаний: а – окисление топлива на поверхности радиальной трещины и центрального отверстия (сечение 950 мм); б – окисление топлива на стыке топливных таблеток (продольное сечение 920–935 мм); в – неокисленное топливо на поверхности радиальной трещины и центрального отверстия (сечение 450 мм)

Также наблюдалось окисление поверхности стыка топливных таблеток от центрального отверстия до начала фаски (рис. 3,б). В центральном и нижнем исследованных сечениях (450 и 70 мм) окисления поверхности центрального отверстия и радиальных трещин таблеток не произошло (рис. 3,в). Во всех исследованных сечениях не обнаружено существенного газового распухания топлива.

Обсуждение результатов

Образование плотных гидридов на внутренней поверхности оболочки указывает на начало процесса формирования вторичного дефекта. Этот процесс хорошо изучен на негерметичных твэлах различных АЭС, однако область их образования в исследованном твэле не согласуется с существующими представлениями о механизме зарождения вторичного дефекта. В твэлах ВВЭР с выгоранием до 50 МВт·сут/кгU, при котором еще сохраняется зазор топливо-оболочка, образование вторичного дефекта происходит на удалении около 2500–3500 мм от первичного дефекта.

В модели, разработанной по результатам исследований дефектных твэлов [1], процесс образования вторичного дефекта связывается с изменением состава среды в зазоре топливо-оболочка. Согласно этой модели при попадании воды через дефект в зазоре топливо-оболочка происходит окисление топлива, продуктов деления и внутренней поверхности оболочки. В результате этих реакций образуется водород, замещающий пар (H_2O) в зазоре топливо-оболочка по мере удаления от дефекта (рис. 4).

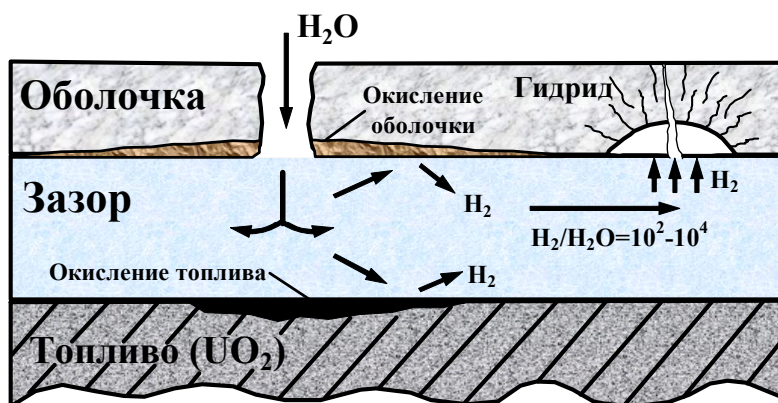


Рис. 4. Схема образования вторичного дефекта в оболочке твэлов с выгоранием до 60 МВт·сут/кгU

Образовавшийся водород может проникать в оболочку. Однако окисление внутренней поверхности оболочки паром даже на участках дефектов оксидной пленки создает плотный оксидный слой, через который проникновение водорода невозможно. По мере удаления от дефекта концентрация водорода в зазоре увеличивается, из-за недостаточной концентрации пара окисле-

ние оболочки прекращается, и водород может проникать в оболочку через трещины в оксидной пленке. Так начинается процесс локального гидрирования оболочки с образованием плотных гидридов на внутренней поверхности.

Развитие этого процесса приводит к охрупчиванию оболочки и ее разрушению (вторичный дефект). В работе [1] было определено, что для начала гидрирования оболочки содержание водорода в паре должно составлять $H_2/H_2O \sim 10^2 - 10^4$. Именно постепенным замещением пара водородом в данной модели объясняется образование вторичного дефекта на значительном расстоянии от участка разгерметизации оболочки. В работе [2] было также показано, что образование вторичного дефекта в твэлах с выгоранием топлива до 60 МВт·сут/кгU зависит от размера первичного дефекта. Если размер дефекта превышает так называемый критический размер дефекта (до 1 мкм²), то пара в зазор топливо-оболочка будет поступать достаточно, чтобы на всей внутренней поверхности оболочки образовалась оксидная пленка, препятствующая поглощению водорода.

Результаты проведенных исследований выявили локальное гидрирование внутренней поверхности оболочки на малом расстоянии от первичного дефекта. Это показывает, что оксидная пленка, образующаяся на внутренней поверхности оболочки вследствие контакта с топливом при выгорании более 50 МВт·сут/кгU (рис. 2), не защищала ее от проникновения водорода, или дефекты в ней не «залечивались» вследствие окисления паром. В исследованном твэле при отсутствии зазора топливо-оболочка пар поступал к оболочке по радиальным трещинам и стыкам топливных таблеток из центрального отверстия, и его обогащение водородом могло происходить только за счет окисления топлива.

Как отмечалось выше, такое окисление наблюдалось на поверхности центрального отверстия и трещин таблеток в верхней части топливного сердечника. Однако в работах [3, 4] показано, что содержание водорода в паре при окислении топлива не может превышать $1 \cdot 10^{-4}$, которая по рассмотренной выше модели недостаточна для образования вторичного дефекта. Более того, термодинамический расчет [4] показывает, что в условиях окисления непроточным паром, с накоплением продукта реакции – водорода, невозможно образование высших оксидов урана – U_4O_9 и U_3O_8 . Их обнаружение в верхней части топливного сердечника (рис. 3) может быть объяснено проникновением воды или парокапельного потока из отверстия в переходной детали вследствие положения искусственного дефекта выше топливного сердечника, а отсутствие в нижней части – повышением концентрации водорода, что не противоречит результатам работ [3, 4]. Однако это не объясняет противоречия между максимальной концентрацией водорода в паре за счет окисления топлива и образованием плотных гидридов в оболочке.

Таким образом, существующая модель образования вторичного дефекта не объясняет явлений гидрирования оболочки, наблюдавшихся в исследованном твэле.

Можно предположить, что в данном случае на гидрирование оболочки влияют дополнительные факторы, одним из которых является облучение, приводящее к радиолизу пара с образованием более реактивных, чем H_2O , про-

дуктов, например, H_2O_2 , которые могут сместить равновесие реакции окисления топлива, однако оценка влияния радиолиза требует дополнительной экспериментальной проверки.

Следует также отметить, что эксперименты по определению предельной концентрации водорода при окислении UO_2 паром [3] были проведены при давлении, не превышающем 70 МПа, тогда как давление теплоносителя при испытании исследованного твэла составляло 160 МПа. В работе [5] сделано предположение, что облучение может влиять на диффузию водорода в оксиде циркония, вследствие чего предельное для начала гидрирования оболочки отношение $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ может снизиться до $1 \cdot 10^{-1}$. Но и такая концентрация водорода не может быть достигнута при окислении топлива.

Образование вторичных дефектов по всей длине топливного сердечника может привести к разрушению твэла и существенному загрязнению теплоносителя продуктами деления и частицами топлива. Объяснение данного эффекта требует специальных экспериментов с моделированием условий облучения негерметичного твэла в реакторе. Для оценки динамики развития вторичных дефектов необходимы эксперименты с более продолжительным облучением негерметичного твэла, а также послереакторные исследования твэлов штатных ТВС, разгерметизировавшихся в активной зоне АЭС при выгорании более 50 МВт·сут/кгU.

Ввиду того, что диаметр искусственного дефекта в исследованном твэле составлял 1 мм, и это не повлияло на начало образования плотных гидридов, можно сделать вывод, что размер дефекта в твэлах с высоким выгоранием не влияет на зарождение вторичных дефектов.

Важным результатом является также то, что в испытанном твэле не было обнаружено признаков перегрева топлива до температуры интенсивного газового распухания топлива, обычно наблюдаемого в негерметичных твэлах с меньшим выгоранием. Это объясняется тем, что в отсутствие зазора топливо-оболочка состав газовой среды в твэле не оказывает существенного влияния на теплопередачу от топлива к оболочке.

Заключение

Проведены послереакторные исследования экспериментального твэла с выгоранием 60 МВт·сут/кгU с искусственным дефектом оболочки, облученного в реакторе МИР в течение 20 суток при максимальной линейной мощности 150 Вт/см.

Выявлены следующие особенности в поведении высоковыгоревшего твэла:

1. Зарождение множественных вторичных дефектов оболочки происходит по всей длине топливного сердечника на участках выхода к оболочке радиальных трещин в таблетках. Оксидная пленка, образующаяся на внутренней поверхности оболочки при контакте с топливом, не защищает оболочку от гидрирования.

2. В твэлах с высоким выгоранием топлива размер первичного дефекта не является ограничивающим фактором для образования вторичных дефектов оболочки.

3. Разгерметизация твэла не приводит к существенному повышению температуры топлива.

4. Более точный прогноз поведения негерметичного твэла может быть сделан при увеличении длительности испытаний, а также по результатам исследования штатных твэлов, разгерметизировавшихся при выгорании более 50 МВт·сут/кгU.

Список литературы

1. Locke D. H. The behaviour of defective reactor fuel // Nuclear Engineering and Design, 1972. Vol. 21. P. 318–330.

2. Lewis B. J., Macdonald R. D., Ivanoff N. V., Iglesias F. C. A review of fuel performance and fission product release studies for defected fuel elements // Proceeding of a technical committee meeting «Fuel failure in normal operation of water reactors: experience, mechanisms and mangement». Dimitrovgrad, 26–29 May, 1992, IAEA-TECDOC-709. P. 79–100.

3. Olander D. R., Yeon Soo Kim, Wei-E Wang, Suresh K. Yagnik. Steam oxidation of fuel in defective LWR rods // J. of Nuclear Materials. 1999. Vol. 270. P. 11–20.

4. Higgs J. D., Lewis B. J., Thompson W. T., He Z. A conceptual model for the fuel oxidation of defective fuel // Ibid. 2007. Vol. 366. P. 99–128.

5. Evdokimov I. A., Sorokin A. A., Kanukova V. D., Likhanskii V. V. A mechanistic approach to develop the secondary hydriding criteria. 8 th International Conference on WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support. Helena Resort, Bulgaria, 26 September – 04 October, 2009.