ИЗГОТОВЛЕНИЕ И ПРОВЕДЕНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ИСПЫТАНИЙ РАЗГРУЗОЧНОЙ ТРУБЫ РЕАКТОРА ВТГР

В.А. Гурин, Ю.А. Грибанов, В.В. Колосенко, В.В. Гуйда Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», Харьков, Украина

E-mail: igor@kipt.kharkov.ua; тел./факс +38(057)335-39-83

Приводится технология изготовления разгрузочной трубы высокотемпературного газоохлаждаемого ядерного реактора (ВТГР). Изготовлены две секции разгрузочной трубы из материала ГСП-50 и две секции из углерод-углеродных композиционных материалов (УУКМ). Проведены радиационные испытания в реакторе БОР-60. Показано, что прочностные характеристики и теплофизические свойства углеграфитовых материалов, из которых изготовлены секции, в 2,5–3,5 раза выше требований, предъявляемых к разгрузочным трубам ВТГР. Установлено, что размерные изменения материала ГСП-50 и УУКМ при 300...600 °С до флюенса нейтронов 1·10²¹ нейтр./см² сравнимы и удовлетворяют требованиям, предъявляемым к разгрузочной трубе ВТГР.

введение

Массовое использование углеграфитовых материалов в энергетических ядерных реакторах объясняется их доступностью, удовлетворительными замедляющими свойствами, малым сечением поглощения нейтронов (0,0032 · 10⁻²⁴ см²) [1] и высокими прочностными характеристиками.

В ближайшем будущем использование углеграфита еще более расширится за счет создания высокотемпературных реакторов с газовым охлаждением.

Концепция высокотемпературного газоохлаждаемого ядерного реактора (ВТГР) предусматривает использование углеграфитовых материалов в качестве замедлителя, отражателя, разгрузочной трубы, шаровых твэлов и других конструкций активной зоны реактора [2].

К числу важных параметров, определяющих работоспособность углеграфитовых элементов в активной зоне (АЗ) реактора, следует отнести стабильность размеров и физико-механических свойств углеродных материалов под воздействием нейтронного излучения.

Стабильность конструкционных размеров элементов АЗ, изготовленных из углеграфитовых материалов, определяется уровнем внутренних напряжений, возникающих вследствие неравномерности теплового радиационного И воздействий по сечению элементов, а прочность углеграфитовых материалов характеризует способность конструкционных элементов противостоять действию внутренних напряжений радиационного и термического происхождений [3].

Условия эксплуатации углеграфитовых элементов конструкции активной зоны реактора весьма разнообразны. Так, например, рабочая температура элементов отражателя изменяется от 320 до 1200 °C, флюенс нейтронов – от $3.9 \cdot 10^{21}$ до 2,5·10²² см⁻², размеры заготовок блоков достигают ~ 700...2500 мм. В аварийных ситуациях максимальная температура АЗ реактора ВТГР может достигать ≥ 1200 °С [2]. Последнее обстоятельство вызывает необходимость проводить испытания по радиационной стойкости углеграфитовых

материалов в широком интервале температур (300...1300 °C) и до флюенса нейтронов 2,5 · 10²² см⁻². Весьма серьезную проблему представляет производство заготовок для верхнего торцевого отражателя, габариты которых составляют 750...2500 мм.

Решение этой проблемы возможно при использовании метода газофазного объемного насыщения пористых сред пироуглеродом, осаждаемым при пиролизе углеводородных газов [4–6].

В газофазной технологии в качестве наполнителя исходной заготовки используется либо порошок графита ядерной чистоты, связанный пироуглеродом (ГСП), либо углеродные волокна или ткани, связанные пироуглеродом (УУКМ).

Характерной особенностью газофазной технологии производства ГСП является уплотнение исходной порошковой заготовки на вибростенде до плотности 1 г/см³ и дальнейшее связывание пироуглеродом в установках пиролиза до плотности 1,65...1,95 г/см³. Принципиальным отличием ГСП от графитов, полученных путём прессования или продавливания через фильеру, является изотропия свойств ГСП.

Основные характеристики УУКМ зависят от вида наполнителя и его объемного содержания в композите, структуры армирования, плотности композита и температуры обработки.

Следует отметить, что по прочностным характеристикам, термопрочности и термоустойчивости УУКМ во много раз превосходят лучшие марки конструкционных графитов [6].

Разгрузочная труба реактора ВТГР предназначена для смены (загрузки–выгрузки) тепловыделяющих и поглощающих шаровых элементов из активной зоны реактора [2].

Разгрузочная труба состоит из трех секций: верхняя секция Ø 800...600 мм, высотой 1315 мм; средняя – Ø 1000...600 мм, высотой 1000 мм; нижняя – Ø 1000...600 мм, высотой 1000 мм. Нижняя и средняя секции трубы отличаются друг от друга геометрией торцов. Материал для изготовления разгрузочной трубы должен быть радиационно и коррозионно-стойким, согласно условиям эксплуатации ВТГР [2]. Требования к материалам разгрузочной трубы приведены в табл. 1.

Таблица 1

Основные требования к материалам разгрузочной трубы [2]

Характеристика	Размер- ность	Величина			
Предел прочности при:					
сжатии	МПа	≥ 65,0			
изгибе	МПа	≥ 35,0			
растяжении	МПа	\geq 20,0			
Максимальная температу- ра эксплуатации верхней секции трубы	°C	1200			
Флюенс быстрых нейтро- нов за 30 лет эксплуата- ции	см ⁻²	3,0·10 ²¹			
Давление гелия в АЗ	МПа	5,0			
Аварийная температура в течение 10 ч	°C	~1500			

Секции разгрузочной трубы изготавливаются или на основе графита на пироуглеродной связке (ГСП-50), или на основе УУКМ с пироуглеродной матрицей.

Целью данной работы является описание изготовления разгрузочной трубы для реактора ВТГР из углеграфитового материала, полученного путём газофазного объёмного насыщения графитового наполнителя пироуглеродом, и проведения радиационных испытаний полученных изделий.

1. МЕТОДИКА ИЗГОТОВЛЕНИЯ РАЗГРУЗОЧНОЙ ТРУБЫ РАЗГРУЗОЧНАЯ ТРУБА ИЗ МАТЕРИАЛА ГСП-50

Разгрузочная труба состоит из трёх секций. В наиболее напряженных условиях как по температуре, так и по флюенсу быстрых нейтронов эксплуатируется верхняя секция, которая непосредственно примыкает к АЗ реактора [2].

Секции разгрузочной трубы изготавливались из ГСП-50, полученного по нижеописанной технологии.

Из графитовых блоков методом их дробления в электрической мельнице получали мелкодисперсный порошок с фракцией ≤ 630 мкм. Полученным порошком заполняли форму, состоящую из двух коаксиально расположенных труб из асбестовой ткани диаметрами ~ 750 и ~ 400 мм и высотой ~ 1500 мм, пропитанных бакелитовым лаком и термообработанных на воздухе при 150...200 °С в течение 50 ч.

Перед засыпкой порошка графита в зазор между трубами снизу вставлялось графитовое кольцо 7 (рис. 1). В диаметральном сечении оно имело форму трапеции. После засыпки графита в коаксиальный зазор сверху также вставлялось графитовое кольцо 2 такой же формы, как и нижнее, только скошенная плоскость кольца была обращена вниз. В дальнейшем заготовка уплотнялась на вибростенде до плотности 1 г/см³.

Заготовка в собранном виде размещалась в установке пиролиза ГФ-3 для проведения процесса объёмного уплотнения порошка графита пироуглеродом в среде углеводородного газа (природный газ).



Рис. 1. Форма для получения разгрузочной трубы на основе ГСП-50: 1 – токоподвод верхний; 2 – кольцо верхнее; 3 – термопара; 4 – труба внутренняя; 5 – порошок графитовый; 6 – труба наружная; 7 – кольцо нижнее;

8 – токоподвод нижний

Нагрев формы осуществлялся прямым пропусканием тока через графитовую засыпку. Величина тока в начале процесса составляла ~ 5 кА при напряжении ~ 10 В. Расход природного газа через установку составлял 12...13 м³/ч.

При заданной мощности (~ 50 кВт) на внутренней границе заготовки реализовывалась температура пиролиза газа 860...900 °С. Рабочая температура контролировалась термопарой 3. размещенной в верхней части заготовки. Температура на внешней границе заготовки была существенно ниже, чем на внутренней, и её градиент по радиусу составлял ~ 80 град/см. В данной заготовке градиент температуры по радиусу разности реализовывался вследствие высот внутренних и внешних слоев графитовой засыпки; в слое меньшей высоты (внутренний) электрическое сопротивление току меньше, следовательно, ток и температура выше, чем в слое большей высоты (внешний слой), а также в результате охлаждения наружных слоёв от водоохлаждаемых стенок камеры установки.

В процессе термообработки такой конструкции в начале процесса происходит уплотнение пироуглеродом внутренних слоев. По мере их уплотнения сопротивление падает, температура повышается, зона пиролиза перемещается от внутренней границы заготовки к внешней. Таким образом, уплотнённые пироуглеродом внутренние слои служат нагревателем для близлежащих наружных слоёв.

Перемещаясь по радиусу, термопара, связанная с механизмом регулировки мощности, задает установленную в начале процесса температуру

пиролиза. Такой метод уплотнения пироуглеродом называется методом движущейся зоны пиролиза [4–6].

Для достижения требуемой конечной плотности заготовки ~ 1,7 г/см³ выбирается оптимальная скорость движения зоны пиролиза 0,25 мм/ч. Мощность нагрева в конце процесса уплотнения составляла ~ 250 кВт, а градиент температуры ~ 30 град/см. Суммарное время связывания формы – 700 ч.

После остывания заготовка извлекалась из камеры пиролиза и обрабатывалась.

РАЗГРУЗОЧНАЯ ТРУБА ИЗ МАТЕРИАЛА УУКМ

Другой вариант разгрузочной трубы был изготовлен из УУКМ. Для этого предварительно изготавливалась оправка-нагреватель из графита в виде трубы с внешним диаметром 380 мм и внутренним – 340 мм, высотой ~ 1500 мм. На трубу одевались два ограничительных кольца из графита диаметром 700х380 мм. Затем на оправку нагревателя наматывались предварительно

увлажнённые полосы углеродной ткани ТГН-2МБ шириной 100...150 мм до диаметра 700 мм.

Изготовленная сборка сушилась на воздухе при ~ 50 °C. К торцам трубы нагревателя присоединялись графитовые диски – токовводы, и форма помещалась в камеру установки пиролиза ГФ-3.

Процесс насыщения формы пироуглеродом осуществлялся при температуре 900 °С по методу движущейся зоны пиролиза. Скорость движения зоны составляла 0,25 мм/ч; расход углеводородного газа – 15...20 м³/ч, электрическая мощность, выделяемая на сборке в конце процесса, – 200...240 кВт; длительность процесса связывания тканевого каркаса пироуглеродом ~ 650 ч.

По окончании процесса пиролиза плотность композиционного материала равна ~ 1,6 г/см³.

Результаты исследования прочностных характеристик ГСП и УУКМ на основе наполнителей из углеродной ткани ТГН-2МБ приведены в табл. 2.

Таблица 2

Прочностные характеристики некоторых марок промышленного графита, ГСП и УУКМ	
на основе наполнителя из углеродной ткани ТГН-2МБ	

Материал	Наполнитель	Исходная плотность, г/см ³	Плотность материала после теплообработки, г/см ³	Среднее удельное давление, МПа
ГСП	Порошок ЭГ-0	0,9	1,76	30
ГСП	Порошок АРВ	1,0	1,84	38
ГСП	Порошок ГМЗ	0,9	1,95	42
УУКМ	Ткань ТГМ-2МБ	0,5	1,60	118

Из приведенных в таблице данных видно, что уплотнение промышленных марок графита пироуглеродом приводит к существенному повышению прочностных характеристик.

Следует отметить, что разрушение образцов всех марок графита носит хрупкий характер. Разрушение УУКМ на основе углеродной ткани происходит с образованием трещины вдоль образующей.

Проведенные предварительные коррозионные испытания материалов разгрузочной трубы в потоке воздуха (10...15 м/с) при температуре 1250...1300 °С показали, что наибольшей коррозийной стойкостью обладают УУКМ.

2. ИССЛЕДОВАНИЕ ФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ГСП И УУКМ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ

свойств исследования физических Для используемых углеграфитовых материалов после облучения были приготовлены образцы, представляющие собой цилиндры диаметром 8 мм и длиной 40 мм, а также втулки с внутренним диаметром 18 мм, наружным 36 мм И соответственно длиной 40 и 12 мм.

Образцы для исследования имели разную плотность (от 1,7 до 1,9 г/см³) и разные режимы термообработки (1000, 1600, 2250 и 2800 °С). Из приготовленных образцов были составлены материаловедческие пакеты МП-95 и МП-100 для

облучения нейтронами в реакторе БОР-60. Пакет М-95 составлен из образцов ГСП диаметром 8 мм и длиной 40 мм; пакет МП-100 составлен из образцов как ГСП, так и образцов УУКМ на основе углеродной ткани ТГН-2МБ диаметром 8 мм, высотой 40 мм, а также с внешним диаметром 36 мм, внутренним – 18 мм и высотой 40 мм. Условия облучения обоих пакетов одинаковые.

Как уже отмечалось выше, в наиболее напряженных условиях как по температуре, так и по флюенсу нейтронов эксплуатируется верхняя секция разгрузочной трубы (ВСРТ). Исходя из этого был проведен расчет напряженно-деформированного состояния только для верхней секции.

В основу расчета заложены физикомеханические характеристики материалов, из которых изготавливалась разгрузочная труба (ГСП-50 различной плотности и УУКМ).

При расчете учитывались размерные изменения материалов под облучением и ослабление потока нейтронов по сечению трубы. При определении термического состояния верхней секции разгрузочной трубы полагали, что между трубой и окружающей её кладкой графита существует При идеальный тепловой контакт. расчете напряженно-деформированного состояния верхней (возникающих в секции ней азимутальных напряжений) использовали методику, описанную в работе [7].

Для ГСП плотностью 1,75 г/см³ результаты расчета показали. характер что изменения напряжений в процессе увеличения флюенса быстрых нейтронов через разгрузочную трубу практически не отличается от ГСП-1,85. Основное отличие состоит лишь в абсолютных значениях азимутальных напряжений. Также следует отметить, что ухудшение теплового контакта между верхней секцией разгрузочной трубы и графитовыми блоками отражателя, в результате разных скоростей усадки графитовых материалов, приводит к снижению величины азимутальных напряжений в разгрузочной трубе. Кроме этого, предварительная термообработка материала трубы, приводящая к росту коэффициента теплопроводности, также способствует снижению азимутальных напряжений в трубе.

Следует отметить, что во всех случаях имеется достаточно большой запас прочности материала, что гарантирует работоспособность разгрузочной трубы по данному параметру.

3. ОБЛУЧЕНИЕ ОБРАЗЦОВ УГЛЕГРАФИТОВЫХ МАТЕРИАЛОВ В РЕАКТОРЕ БОР-60

Температура облучения пакетов составляла (800±50) °С, флюенс быстрых нейтронов с энергией $E \ge 1,0$ МэВ – $6,5 \cdot 10^{21}$ см⁻².

Визуальный осмотр пакетов после облучения показал, что все образцы сохранили свою целостность (отсутствуют искривление и отслаивание). Масса образцов не изменилась.



Рис. 2. Относительное изменение линейных размеров образцов ГСП, облученных при температурах 600 °С (светлые метки) и 800 °С (тёмные метки), в зависимости от флюенса нейтронов

На рис. 2 приведено относительное изменение линейных размеров ГСП под действием облучения. Как видно из рисунка, на начальном этапе облучения скорость радиационной усадки материалов ГСП заметно возрастает, а после флюенса (2...3)·10²¹ см⁻² – стабилизируется.

Материал ГСП во всем исследованном диапазоне температур и флюенса нейтронов показывает изотропную усадку. Величина усадки зависит от содержания в структуре неграфитируемого связующего и максимальна для материалов ГСП-74 и ГСП-90 с плотностью 1,70 г/см³.

Повышение содержания пироуглерода свыше 74 мас.% не влияет на величину формоизменения, что свидетельствует о достижении стадии насыщения.

Радиационные формоизменения ГСП не чувствительны к температуре облучения (см. светлые точки облучения при 600 °С, темные точки – при 800 °С, рис. 2)

Относительное изменение величины модуля упругости для облученных образцов ГСП-50 приведено на рис. 3.



Рис. 3. Относительное изменение динамического модуля упругости $\Delta E/E$ образцов ГСП-50, облучённых при температуре 700...800 °С, в зависимости от флюенса нейтронов F ($E \ge 0,18$ МэВ): кривая 1 – образцы $c \gamma = 1,70 \ c/cm^3$, $T_{oбp} = 2800$ °С; кривая 2 – образцы $c \gamma = 1,70 \ c/cm^3$, $T_{oбp} = 2250$ °С

Для ГСП-50, вплоть до флюенса нейтронов $(2...5) \cdot 10^{21}$ см⁻², не наблюдается снижения $\Delta E/E$ (см. кривая 1).

Уплотнение образцов графита под облучением и росту радиационный наклеп приводят к прочностных свойств графита. Величина динамического упругости ГСП-50 модуля увеличивается на 60...120% при флюенсе 5·10²¹ см⁻². предварительная Как видно ИЗ рис. 3, ГСП термообработка образцов увеличивает динамический модуль упругости (см. кривые 1 и 2).

На рис. 4 приведено относительное изменение удельного электросопротивления ГСП после облучения флюенсом нейтронов 6,5·10²¹см⁻².





Как видно из рис. 4, какой либо деградации графита наблюдается, свойств не 0 чем стабилизация свидетельствуют удельного электросопротивления ($\Delta \rho / \rho$), а также отсутствие снижения модуля упругости от первоначального значения (см. рис. 3). Последнее обстоятельство может быть связано с совершенствованием структуры пироуглерода под облучением.

Термообработка ГСП способствует снижению величины радиационной усадки (рис. 5). Это связано с увеличением доли графитовой составляющей в материале ГСП в результате совершенствования структуры пироуглерода.



Рис. 5. Зависимость усадки блочного ГСП-50 плотностью 1,91 г/см³ (1, 3) и ГСП-90 плотностью 1,76 г/см³ (2, 4) от флюенса нейтронов при температурах облучения 500...600 °C: 1, 2 – материал термообработан при 2800 °C в течение 1 ч; 3, 4 – исходные материалы

Термообработка ГСП при температуре ≥ 2500 °С приводит к незначительному снижению

прочностных характеристик и значительному росту коэффициента теплопроводности.

выводы

Изготовлены четыре секции разгрузочной трубы для ВТГР: две секции на основе блочного ГСП-50 и две секции на основе углеродной ткани ТГМ-2МБ с пироуглеродной матрицей.

На образцах, вырезанных из труб, изучены прочностные и теплофизические свойства материалов после облучения.

Показано, что прочностные характеристики и теплофизические свойства материала ГСП-50 плотностью 1,70 и 1,85 г/см³ удовлетворяют требованиям, приведенным в табл. 1, а прочность неграфитированных УУКМ (с учетом анизотропии свойств) в 2,5–3,5 раза выше указанных требований.

Проведен расчет напряженно-деформированного состояния верхней секции разгрузочной трубы при предполагаемых параметрах её эксплуатации в реакторе в течение 30 лет. Показано, что в начальный период работы реактора напряжения в материале имеют термический характер. В процессе работы реактора (набора флюенса нейтронов) максимальное значение σ_{cx} (предел прочности на сжатие) реализуется после 12 лет его работы. В дальнейшем происходит снижение роста сжимающих напряжений за счет их релаксации.

Необходимо отметить, что ухудшение теплового контакта между трубой и боковым отражателем за счет разных скоростей усадки материала и роста коэффициента теплопроводности приводит к снижению величины азимутальных напряжений.

Установлено. что размерные изменения ГСП-50 слабо материала чувствительны к облучения. Отжиг температуре ГСП при температуре ≥ 1600 °С приводит к снижению как скорости радиационной усадки, так и ее величины.

Показано, что линейные усадки УУКМ при температуре облучения 300 и 600 °С до флюенса быстрых нейтронов ~ $1,0\cdot10^{21}$ нейтр./см² сравнимы с усадкой образца ГСП.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. С.Е. Вяткин, А.Н. Диев, В.Г. Нагорный и др. Ядерный графит. М.: «Атомиздат», 1967, с. 297.

2. Д. Беденинг. Газоохлаждаемые высокотемпературные реакторы / Пер. с нем. (ФРГ-1972) / Под. ред. Ю.И. Митяева. М.: «Атомиздат», 1975, 224 с.

3. Ю.С. Виргильев. Радиационное изменение прочностных свойств конструкционного графита // *Атомная энергия*. 1974, т. 36, с. 479-490.

4. В.А. Гурин, В.Ф. Зеленский. Газофазные методы получения углеродных и углеродуглеродных материалов // ВАНТ. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение». 1999, №4(76), с 13-31.

5. В.А. Гурин, И.В. Гурин, С.Г. Фурсов. Исследования газофазного уплотнения пироуглеродом пористых сред методом радиально движущейся зоны пиролиза // *Там же*, с. 32-45. 6. В.М. Ажажа, И.В. Гурин, В.А. Гурин, И.М. Неклюдов. Углерод-углеродные композиты: Препринт. Харьков: ННЦ ХФТИ, 2009, 22 с.

7. Нормы расчёта на прочность типовых узлов и деталей из графитоуран-графитовых канальных реакторов НГР-01-90 № Е-230-2536. НИКИЭТ, НИИ «Графит», ИАЭ, ЧПИ, 1991, 255 с.

8. В.Е. Иванов, В.Ф. Зеленский, В.А. Цыканов и др. Дисперсионные тепловыделяющие и

поглощающие элементы на основе графита на пироуглеродной связке для высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов // Реакторное материаловедение (Труды Конференции по реакторному материаловедению, Алушта, 29 мая–1 июня 1978 г.). М.: ЦНИИатоминформ, 1978, т. 6, с. 308-325.

Статья поступила в редакцию 26.01.2015 г.

ВИГОТОВЛЕННЯ І ПРОВЕДЕННЯ РАДІАЦІЙНИХ ВИПРОБУВАНЬ РОЗВАНТАЖУВАЛЬНОЇ ТРУБИ РЕАКТОРА ВТГР

В.А. Гурін, Ю.О. Грибанов, В.В. Колосенко, В.В. Гуйда

Приводиться технологія виготовлення розвантажувальної труби високотемпературного газоохолоджуваного ядерного реактора (ВТГР). Виготовлено дві секції розвантажувальної труби з матеріалу ГСП-50 і дві секції з вуглець-вуглецевих композиційних матеріалів (ВВКМ). Проведено радіаційні випробування в реакторі БОР-60. Показано, що міцностні характеристики і теплофізичні властивості вуглеграфітових матеріалів, з яких виготовлені секції, в 2,5–3,5 рази вищі за вимоги, що пред'являються до розвантажувальних труб ВТГР. Встановлено, що розмірні зміни матеріалу ГСП-50 і ВВКМ при температурі 300...600 °С до флюєнсу нейтронів $1 \cdot 10^{21}$ нейтр./см² порівнянні і задовольняють вимогам, що пред'являються до розвантажувальної труби ВТГР.

MANUFACTURING AND TESTING THE HTGR REFUELING TUBE

V.A. Gurin, Yu.A. Gribanov, V.V. Kolosenko, V.V. Gujda

The paper describes the manufacturing technique for a refueling tube of a high-temperature gas-cooled nuclear reactor (HTGR). Four refueling tube sections were made: two sections from GSP-50 material and two sections from carbon-carbon (C–C) composite materials. Radiation tests were carried out in the reactor BOR-60. Experimental results show that the strength characteristics and thermophysical properties of graphitized carbon materials, from which the sections have been manufactured, are higher by a factor of 2.5–3.5 as compared with the HTGR refueling tube requirements. The dimensional changes of GSP-50 and C–C composite materials at temperatures between 300 and 600 °C up to the neutron fluence of $1 \cdot 10^{21}$ n/cm² are comparable and meet the specifications for HTGR refueling tubes.