

ГАФНИЙ – МАТЕРИАЛ ДЛЯ СИСТЕМ КОМПЕНСАЦИИ ИЗБЫТОЧНОЙ РЕАКТИВНОСТИ В ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ РЕАКТОРАХ

В.Д. Рисованый, А.А. Васильев, Б.А. Шиляев, Р.В. Ажажа, К.В. Ковтун*

**Открытое акционерное общество «Государственный научный центр –*

Научно-исследовательский институт атомных реакторов»,

Димитровград, Россия;

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,

Харьков, Украина

E-mail: kkovtun@kipt.kharkov.ua

Одним из возможных способов повышения эффективности серийных атомных реакторов ВВЭР-1000 является использование гафния в качестве материала регулирующих стержней. Целью исследований было получение макроскопических параметров радиационного повреждения образцов из прутков гафния для определения работоспособности материала в органах регулирования ядерного реактора. В качестве материала для радиационных исследований использовали гафний марки ГФЭ-1. Реакторные испытания образцов гафния проводились на реакторе СМ. Результаты испытаний и послереакторных исследований свидетельствуют о высокой размерной и коррозионной стабильности материала при облучении нейтронами до флюенса $0,6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E_n > 0,1 \text{ МэВ}$) в воде при температуре $300 \text{ }^\circ\text{C}$.

ВВЕДЕНИЕ

Стремление получить дешевую электроэнергию, используя реакцию деления урана-235 нейтронами, требует увеличения длительности работы всех частей активной зоны ядерного реактора и повышения его к.п.д. Путем оптимизации внутреннего топливного цикла ядерного реактора, включая повышение уровня выгорания ядерного топлива, и оптимизации вида и характеристик выгорающих поглотителей нейтронов можно достичь повышения эффективности использования ядерного топлива и экономичности АЭС.

Опыт эксплуатации серийных реакторов ВВЭР-1000 показал, что при существующей системе компенсации реактивности топливной загрузки невозможно увеличить энерговыработку реактора и перейти на 18- и 24-месячные интервалы между перегрузками ядерного топлива. В настоящее время в США на 75 % АЭС освоены топливные циклы с интервалом перезагрузки 18 месяцев, а также осваиваются циклы с интервалами перезагрузки 24 месяца [1, 2].

Для управления ядерным реактором в различных режимах используют три основных способа регулирования реактивности.

В первом способе компенсация исходного ($> 30 \%$) запаса реактивности осуществляется пассивным способом – введением выгорающего поглотителя Gd_2O_3 в урановое топливо UO_2 и борной кислоты H_3BO_3 в замедлитель (теплоноситель).

Во втором способе компенсацию небольших изменений реактивности, зависящую от режима работы ядерного реактора (так называемого оперативного запаса реактивности), осуществляют вводом в активную зону реактора регулирующих стержней из поглощающих материалов.

Для аварийной остановки ядерного реактора с быстрым уменьшением реактивности используют сброс стержней из поглощающих материалов в активную зону.

Таким образом, экономичность и безопасность эксплуатации ядерного реактора зависят от способа компенсации избыточной реактивности топливной загрузки и ядерно-физических характеристик поглощающего нейтроны материала компенсирующих стержней.

Эффективность воздействия компенсирующих стержней на реактивность определяется:

– долей поглощенных ими нейтронов в активной зоне ядерного реактора;

– дополнительной утечкой нейтронов из активной зоны, вызванной деформацией нейтронного поля.

Депрессия пространственного распределения потока тепловых нейтронов в активной зоне ядерных энергетических реакторов вблизи органов регулирования из-за высокого поглощения приводит к неравномерности выгорания ядерного топлива и пространственного энерговыделения.

Пример такого явления для реакторов типа PWR приведен на рис. 1. Это обстоятельство может привести к понижению эффективности использования ядерного топлива, пережогу твэлов и нарушению их герметичности.

Для снижения себестоимости электроэнергии, вырабатываемой реакторами АЭС, необходимо увеличивать температуру активной зоны реактора до $800 \dots 1000 \text{ }^\circ\text{C}$ (чтобы увеличить к.п.д.).

Это потребует замены применяемых в настоящее время для изготовления регулирующих стержней сплава $80\% \text{Ag} - 15\% \text{In} - 5\% \text{Cd}$ и V_4C материалами, обеспечивающими необходимую длительность кампании ядерного топлива в активной зоне и обладающими лучшими механическими и

коррозионными свойствами при повышенных температурах. Одним из таких материалов может быть гафний.

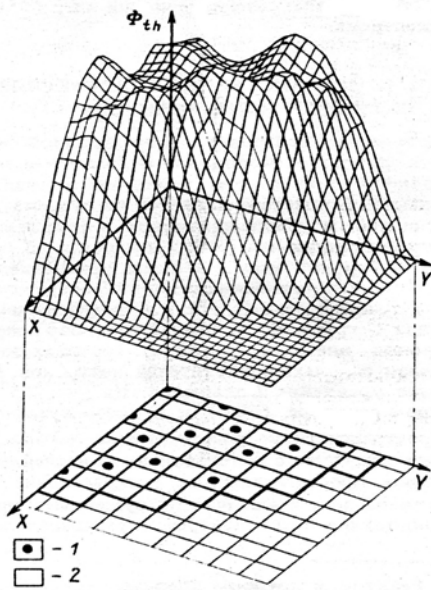


Рис. 1. Пространственное распределение потока тепловых нейтронов $\Phi_{th}(\vec{r})$ в активной зоне реактора PWR с частично погруженными органами регулирования: 1 – элементарная ячейка активной зоны с органами регулирования; 2 – ячейка с ТВС

Гафний обладает сравнительно небольшим сечением поглощения тепловых нейтронов (105 барн при 20 °С и 66 барн при 300 °С) и практически не деформирует поле тепловых нейтронов, уменьшая их утечку из активной зоны, при этом имеет высокую величину поглощения замедляющихся нейтронов (резонансный интеграл $I_7 = 1992$ барна). Компенсирующая способность Hf на единицу объема материала почти такая же, как у сплава 80%Ag-15%In-5%Cd. Сочетание Gd, интегрированного в топливо, и Hf в регулирующих стержнях реактора позволяет увеличить коэффициент использования установленной мощности за счет увеличения времени между перегрузками ядерного топлива с 9,6 месяца (7000 ч) до 18 и 24 месяцев.

Высокая температура плавления (~ 2220 °С), хорошие механические свойства, достаточно высокая теплопроводность, вдвое превышающая теплопроводность карбида бора, и коррозионная стойкость позволяют использовать гафний без оболочек в качестве поглощающего и одновременно конструкционного материала для регулирующих стержней ядерных реакторов [3].

При температуре ниже 1760 °С гафний имеет гексагональную плотноупакованную (ГПУ) кристаллическую решетку. В процессе пластической деформации при изготовлении элементов конструкций из поликристаллического Hf в материале развивается текстура деформации, которая приводит к некоторой анизотропии свойств текстурированного металла [4].

Такая текстура может приводить к направленному радиационному росту, что наблюдается в кристаллически анизотропных материалах [5].

При использовании уранового топлива UO_2 с интегрированным выгорающим поглотителем Gd_2O_3 исчезают ограничения на местоположение ТВС в активной зоне, что дает возможность использовать традиционные компоновки топливных загрузок и уменьшить радиальную утечку нейтронов из активной зоны ядерного реактора.

Компенсирующая способность совместного применения выгорающих поглотителей с Gd_2O_3 и регулирующих стержней из Hf определяется как

$$P_{san} = P_{san}^{st} + P_{san}^{op}$$

где P_{san}^{st} – часть компенсирующей способности, расходуемая выгорающим поглотителем в топливе, замедлителе на выгорание и шлакование ядерного топлива; P_{san}^{op} – оперативная (маневренная) часть P_{san} расходуемая на компенсацию эффектов, зависящих от режима работы ядерного реактора.

Такое совместное использование позволяет увеличить топливную загрузку активной зоны и улучшить динамические свойства ядерного реактора, так как обеспечивается отрицательная обратная связь по температуре теплоносителя во всем интервале изменения мощности реактора [6].

Целью исследований было получение макроскопических параметров радиационного повреждения образцов из прутков гафния для определения работоспособности материала в органах регулирования ядерного реактора.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДИКИ

Исходным материалом для получения образцов являлся слиток чистого кальциетермического гафния диаметром 180 мм марки ГФЭ-1, выплавленный электронно-лучевой плавкой.

Этот слиток повторно переплавляли в электронно-лучевой печи в слитки диаметром 85 мм. Полученные слитки ковали при высокой температуре, а финишной деформационной обработкой была получена горячая экструзия при температуре 1100 °С и давлении 14 т/см² с последующим вакуумным рекристаллизационным отжигом при 850 °С (1 ч).

В результате получены прутки диаметром 8,0...8,6 мм со средним размером зерна 28 мкм.

Элементный анализ образцов проводили на спектрометре с индуктивно-связанной плазмой «SPECTROFLAME MODULA S».

Химический состав исходных слитков гафния марки ГФЭ-1 приведен в таблице.

Реакторные испытания образцов гафния проводились с использованием разборного облучательного устройства ОУ-2631, загруженного в канал №5 реактора СМ.

На рис. 2 показан разрез высокотемпературного канала реактора СМ с размещенным в нем облучательным устройством.

На рис. 3 приведена конструкция облучательного устройства ОУ-2631 с размещенными в нем образцами для реакторных испытаний.

Химический состав Hf марки ГФЭ-1

Элемент	Содержание, вес. %
N	0,005
C	0,004
O	0,04
Fe	0,04
Si	0,024
Cu	0,0001
Zr	0,2
Ni	0,001
Ti	0,001
Al	0,001
Ca	0,0025
Mg	0,001
Cr	0,0004
Nb	0,003

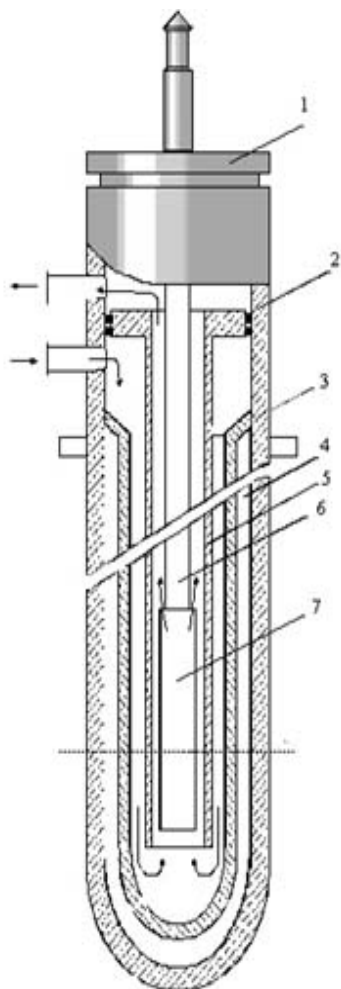


Рис. 2. Высокотемпературный канал с ОУ-2631:
1 – крышка канала; 2,3 – внешний и внутренний корпус канала; 4 – газовый зазор; 5 – разделитель потока; 6 – штанга; 7 – облучательное устройство; → движение теплоносителя

Облучение образцов проводилось в течение 200 эффективных суток до максимального флюенса $\Phi_i = 5,9 \cdot 10^{21}$ нейтр./см² ($E_n > 0,1$ МэВ).

Плотность потока нейтронов

на образец $\Phi = 2 \cdot 10^{14}$ нейтр./(см²·с)

Температура на поверхности образцов... ≤ 330 °С

Температура теплоносителя (вода)

на входе..... 260... 300 °С

Давление воды..... 13... 16 МПа

Расход воды..... 4 м³/ч

Плотность потока нейтронов в реакторе:

тепловых..... $\geq 7 \cdot 10^{14}$ нейтр./(см²·с)

быстрых..... $> 2 \cdot 10^{14}$ нейтр./(см²·с)

Скорость набора дозы..... $\sim 10^7$ сна/с

Микроструктуру в образцах после облучения исследовали с помощью просвечивающего электронного микроскопа JEM-2000 FXII (120 кВ).

Плотность образцов гафния измеряли методом гидростатического взвешивания на воздухе и в четыреххлористом углероде. Взвешивание производили на аналитических весах 2-го класса АДВ-200М.

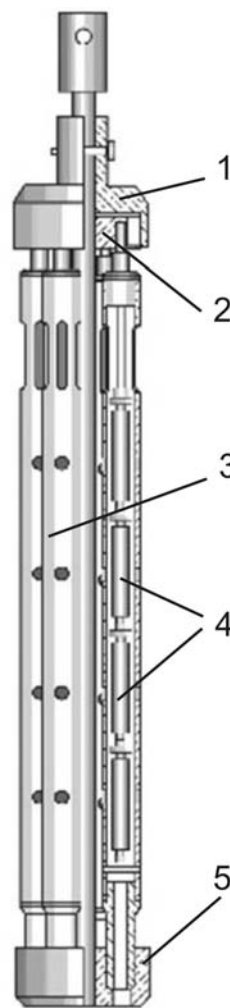


Рис. 3. Конструкция облучательного устройства:

1 – фиксатор;

2,5 – дистанционирующие решетки;

3 – перфорированный пенал;

4 – испытываемый образец

РЕЗУЛЬТАТЫ

Из результатов измерений геометрических размеров образцов следует, что вследствие реакторных испытаний изменений диаметра не было отмечено ни на одном из образцов за весь период облучения, вплоть до максимального флюенса.

Результаты макроскопических проявлений радиационного повреждения образцов Hf в процессе облучения показаны на рис. 4–6.

Измерения поэтапного изменения длины образцов свидетельствуют о том, что радиационный рост образцов Hf не превышает 0,4 % при сохранении установившейся скорости такого роста вплоть до флюенса $5,9 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ (см. рис. 4).

После реакторных испытаний не отмечено существенных признаков коррозионного повреждения – образцы на всех этапах сохраняли гладкую блестящую металлическую поверхность.

Металлографические исследования также не выявили признаков коррозионного повреждения поверхности с макроскопическим увеличением и отслоением оксидной пленки.

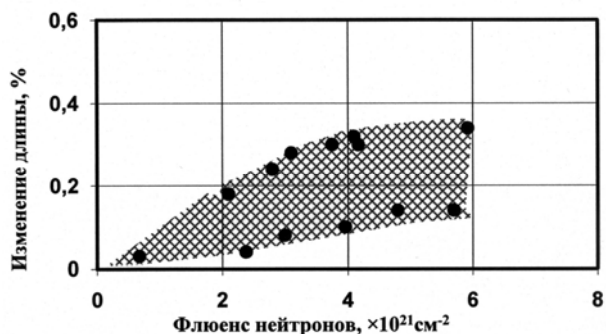


Рис. 4. Зависимость изменения длины образцов от флюенса нейтронов для гафния ГФЭ-1

Плотность материала образцов монотонно уменьшается с увеличением дозы облучения, и ее суммарное изменение не превышает 1 % (см. рис. 5).

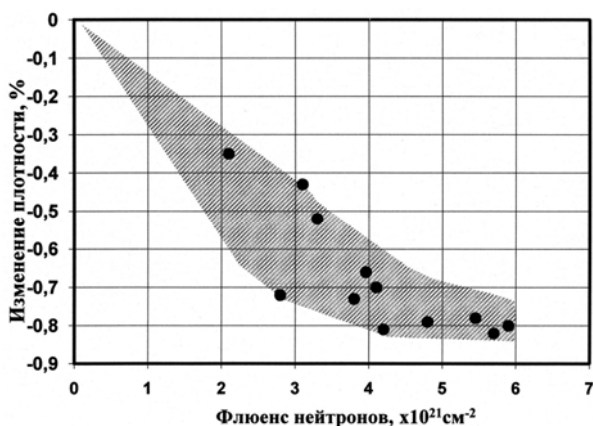


Рис. 5. Зависимость изменения плотности от флюенса нейтронов для гафния ГФЭ-1

Привес образцов, характеризующий коррозию гафния в условиях активной зоны (температура 300 °С, давление 15 МПа), не превышает 450 мг/дм² за 7000 ч (см. рис. 6).

Результаты измерения массы образцов при испытаниях отражают монотонное увеличение

массы как в результате постепенного равномерного окисления поверхности, так и за счет поглощения нейтронов с образованием более тяжелых ядер тантала и лютеция [4].

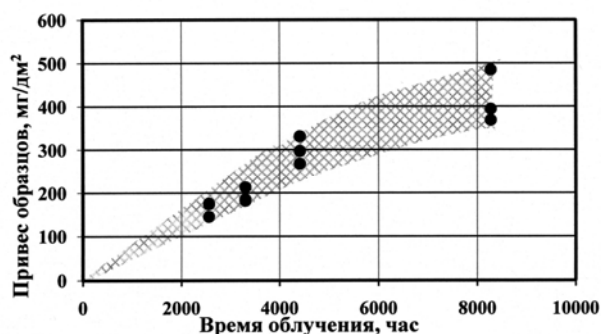


Рис. 6. Зависимость привеса образцов от времени облучения

Микроструктура материала после облучения не отличается от той, что была на необлученных образцах, хотя в одном было обнаружено небольшое количество произвольно ориентированных гидридов в периферийных слоях материала, что иллюстрирует рис. 7.

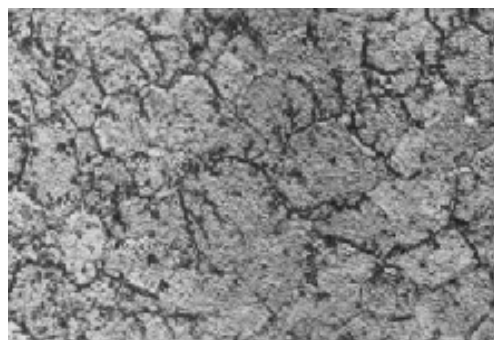


Рис. 7. Микроструктура образцов Hf после облучения флюенсом нейтронов $2,4 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($\times 400$), гидриды в образце после облучения

Микротвердость образцов гафния при облучении нейтронами увеличивается от 2100 до 4000 МПа, что свидетельствует об упрочнении металла и снижении его пластичности.

В результате электронно-микроскопических исследований были обнаружены дислокации в призматической $\{10\bar{1}0\}$ и пирамидальной $\{10\bar{1}1\}$ плоскостях.

В фольгах с призматической ориентацией наблюдаются только дислокации *c*-типа в виде прямолинейных отрезков длиной до 350 нм, ориентированные по направлению $\langle hko \rangle$ (рис. 8). Их концентрация, оцененная по методу определения плотности обычных линейных дислокаций, равна $\sim 3 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ с ошибкой определения $\sim 30\%$. При изменении действующего напряжения на $[010]$ или $[011]$, когда *c*-дислокации становятся невидимыми, в структуре образцов появляются дислокационные петли *a*-типа с контрастом в виде черных точек или малые дислокационные петли с линией нулевого контраста. Их размер не превышает 30 нм, а концентрация составляет $(3,2 \pm 0,9) \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

Микроструктура первичных радиационных повреждений представляет собой статистически равномерно распределенные в объеме зерна пары Френкеля, образованные в кинематических процессах реакций радиационного захвата (n, γ) тепловых и резонансных нейтронов изотопами гафния и пиков смещений в конце пробега первично выбитых атомов, образованных быстрыми нейтронами деления ($E_n > 0,1$ МэВ).

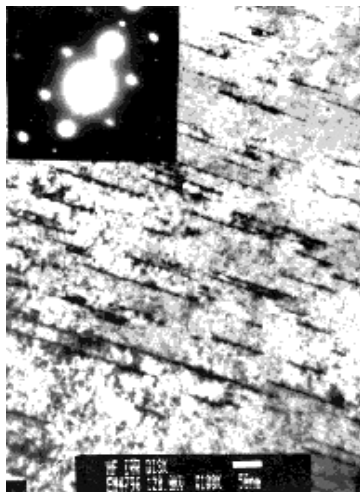


Рис. 8. Наблюдаемые дислокации в виде прямолинейных отрезков длиной до 350 нм; фотография сделана с помощью просвечивающего электронного микроскопа ($\times 25000$)

Образование радиационных дефектов стимулирует макроскопическую тенденцию радиационного роста образцов гафния, а также приводит к радиационному упрочнению и снижению пластичности.

ВЫВОДЫ

1. Получены макроскопические параметры радиационного повреждения образцов из прутков гафния для определения работоспособности

материала в органах регулирования ядерного реактора.

2. Накопление радиационных дефектов в виде дислокационных петель и их скоплений, обнаруженное при исследованиях, не приводит к большим объемным изменениям в материале, что является характерным для гафния вплоть до флюенсов $\sim 2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$

3. Результаты реакторных испытаний и послереакторных исследований свидетельствуют о высокой размерной и коррозионной стабильности прутков гафния марки ГФЭ-1, изготовленных методом горячей экструзии, при облучении нейтронами до флюенса $0,6 \times 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E_n > 0,1$ МэВ) в воде при температуре 300 °С. В пределах этих условий гафний является перспективным материалом для использования в регулирующих стержнях атомных реакторов без защитных оболочек и покрытий.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. F. Skogen, T. Hulsman, T. Gafe. Archiving two year cycles in PWR's // *Proc. Fuser Reactor Phys. Conf. Takson Hole, Wyoming*, 1988, p. 1.109-1.118.

2. Водо-водяные реакторы и их топливный цикл за рубежом // *Усовершенствование топлива водо-водяных реакторов*. М.: ЦНИИАтоминформ, 1989, в. 8, 58 с.

3. В.Д. Рисованый, Е.П. Ключков, В.Б. Пономаренко. *Гафний в ядерной технике*. Димитровград: НИИАР, 1993, 143 с.

4. V. Fidleris The irradiation creep and growth phenomena // *JNM*. 1988, v. 159, p. 22-42.

5. B.L. Eyre, J.R. Matthews. Technological impact of micro structural evolution during irradiation // *JNM*. 1993, v. 205, p. 1-15.

6. Ю. Казанский, Е.С. Матусевич. *Экспериментальные методы физики реакторов*. М.: «Энергоатомиздат», 1984, 274 с.

Статья поступила в редакцию 06.03.2013 г.

ГАФНІЙ – МАТЕРІАЛ ДЛЯ СИСТЕМ КОМПЕНСАЦІЇ НАДМІРНОЇ РЕАКТИВНОСТІ В ЯДЕРНИХ ЕНЕРГЕТИЧНИХ РЕАКТОРАХ

В.Д. Рисований, А.О. Васильєв, Б.А. Шилєв, Р.В. Ажажа, К.В. Ковтун

Одним з можливих способів підвищення ефективності серійних атомних реакторів ВВЕР-1000 є використання гафнію як матеріалу регулюючих стрижнів. Метою досліджень було здобуття макроскопічних параметрів радіаційного пошкодження зразків з прутків гафнію для визначення працездатності матеріалу в органах регулювання ядерного реактора. Як матеріал для радіаційних досліджень використовували гафній марки ГФЕ-1. Реакторні випробування зразків гафнію проводилися на реакторі СМ. Результати випробувань і післяреакторних досліджень свідчать про високу розмірну і корозійну стабільність матеріалу при опроміненні нейтронами до флюенса $0,6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E_n > 0,1$ МэВ) у воді при температурі 300 °С.

HAFNIUM – MATERIAL FOR SYSTEMS OF INDEMNIFICATION OF SURPLUS REACTIVITY IN NUCLEAR POWER REACTORS

V.D. Risovany, A.A. Vasil'ev, B.A. Shilyev, R.V. Azhazha, K.V. Kovtun

One of possible methods of efficiency of serial atomic reactors VVER-1000 increase is the use of hafnium as material of regulating-rods. The purpose of researches receipt of macroscopic parameters of radiation damage of hafnium rod specimens for determination of material serviceability in the adjusting device of nuclear reactor was. As material for radiation researches hafnium GFE-1 make use of. The reactor tests of hafnium specimens on the reactor SM were carried out. Results of the tests and post-irradiation researches a high size and corrosive stability of material at neutrons irradiation to the fluence $0,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-2}$ ($E_n > 0,1$ MeV) in water at a temperature 300 °С demonstrate.