

ПРИМЕСИ И ИХ ВЛИЯНИЕ НА СТРУКТУРУ И СВОЙСТВА ЦИРКОНИЕВЫХ ИЗДЕЛИЙ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

Никулина А.В., Мальгин А.Г. (ВНИИНМ им. А.А. Бочвара, г. Москва)

Примеси, обусловленные способом производства циркония, сплавов на его основе и изделий из них, могут оказывать заметное влияние на качество, структуру и свойства изделий. Большинство примесей оказывает негативное влияние на характеристики циркониевых изделий, и их концентрация поддерживается на низком уровне путем селекции сырьевых материалов, оптимизации металлургических и технологических процессов и ограничивается контролем в соответствии со стандартами и спецификациями на изделия. Целью таких мероприятий является сохранение низкого коэффициента захвата нейтронов циркония, высокой коррозионной стойкости в теплоносителе, технологичности и трещиностойкости изделий в условиях производства и эксплуатации в активной зоне ядерных реакторов.

В табл. 1 приведены типичные требования, установленные американскими и российскими стандартами к допустимой концентрации примесей в цирконии и сплавах на его основе. Основой требований явились результаты исследований, выполненных в ранние периоды становления и развития производства циркония и

сплавов на его основе. В числе таких исследований — влияние примесей на коррозию циркония и сплавов на его основе в воде и паре при высокой температуре в условиях, имитирующих взаимодействие с теплоносителем [1—3].

Более поздние исследования, связанные с увеличением масштабов производства циркония и изделий из него, с постоянно растущими требованиями к эффективности производства изделий и безопасности активных зон водо-водяных и кипящих ядерных реакторов, где основным конструкционным материалом является цирконий, показали, что требования действующих спецификаций к допустимой концентрации примесей в циркониевых сплавах и изделиях из них недостаточны для выполнения указанных задач. Так, выявлена заметная зависимость:

микроструктуры изделий, формирующейся при ($\beta \rightarrow \alpha$)-фазовом превращении, и пористости изделий от концентрации не только таких элементов, как C, P, Si, малорастворимых в цирконии, но и от летучих примесей, таких, как Mg, K, Na, Ca, Cl, F [4—9];

вязкости разрушения изделий и пластичности от микроструктуры и концентрации указанных примесей [4, 10];

остаточной пластичности окисленных в условиях проектных аварий с потерей теплоносителя образцов от микроструктуры и концентрации указанных примесей [5, 11].

Выявленные зависимости структуры и свойств изделий от концентрации примесей привели в некоторых случаях к ужесточению контроля и оптимизации технологических операций на стадиях производства циркония, сплавов и изделий из них. Работы в этом направлении продолжаются. Еще недостаточно накоплено данных для объяснения механизма выявленных зависимостей качества, структуры и свойств циркониевых изделий от примесного состава, что можно объяснить недостаточностью аналитических методов определения концентрации примесных элементов, прежде всего таких, как Mg, K, Na, Ca, Cl, F, которые относятся к группе следовых, и трудностью оценки равномерности их распределения в микрообъемах

Таблица 1. Максимальное содержание примесей в циркониевых сплавах, разрешенное спецификациями, млн⁻¹

Элемент	Циркалой-2, -4	Zr—2,5Nb	Zr—1Nb
Al	75	75	80
B	0,5	0,5	5,0
Cd	0,5	0,5	3,0
C	270	270/150	200
Co	20	20	—
Cu	50	50	50
Hf	100	100/50	500/100
H	25	25	15
Mg	20	20	—
Mn	50	50	20
Mo	50	50	50
Ni	70	70/35	200
N	80	80/65	60
Si	120	120	200
Ti	50	50	50
Ca	—	—	300
K	—	—	40
F	—	—	30
Cl	—	—	30

промышленных циркониевых слитков и изготовленных из них изделий.

В настоящей статье приведены исследования, показывающие большую значимость примесей, в том числе следовых в формировании микроструктуры циркониевых изделий и их свойств, а также пути снижения концентрации и достижения равномерности распределения примесей в изделиях.

Основные примесные элементы в цирконии и изделиях из него. Сырьевые материалы, используемые при металлургическом производстве циркония реакторной чистоты, и загрязнение на стадиях технологических операций, применяемых при изготовлении изделий, являются основным источником примесных элементов в цирконии и изделиях из него. В числе основных примесей, происхождение которых связано с сырьевыми материалами и со способом производства циркония (магнийтермия, электролиз расплавленных солей, иодидное рафинирование, скрап), — Mg, Si, C, H, Cl, K, Ca, F, P, O, Fe, Ni, Cr, Cu, Al, Hf. В наибольшей степени изучено влияние O, N, H, C, Si, Al, Fe, Ni, Hf. Их концентрация ограничивается допустимым количеством в материале, при этом определяется фактическая концентрация. Остальные примеси отнесены к следовым, и их концентрация в стандартах ограничена максимально допустимым значением, фактическая концентрация таких следовых элементов, как правило, не определяется, что обусловлено их малым количеством, отсутствием до настоящего времени представительных данных о влиянии на свойства изделий. Этими обстоятельствами обусловлено и отсутствие методов массового контроля содержания таких элементов в циркониевых материалах, как Mg, Cl, P, Na, K, Ca, F.

При выплавке слитков и их переработке в изделия могут дополнительно удаляться летучие примеси и одновременно происходить загрязнение такими элементами, как Si, C, O, H. Одновременно возможна и сегрегация примесей.

В табл. 2 в качестве примера приведено типичное содержание примесей в изделиях из американского сплава циркалой-4 и российского сплава Zr—1%Nb для ядерных реакторов. Показано, что гафний повышает коэффициент захвата нейтронов циркония, N, C, Al, Ti снижают коррозионную стойкость циркония в воде при высокой температуре, C, H, Si, Cl, P и F — вязкость разрушения и тем самым ухудшают тех-

нологичность и трещиностойкость изделий, кислород повышает прочность циркония, железо благотворно влияет на сопротивление коррозии циркония в воде и паре, никель усиливает поглощение водорода и тем самым снижает вязкость разрушения изделий.

Т а б л и ц а 2. Типичное максимальное содержание примесей в циркониевых сплавах, млн⁻¹

Элемент	Циркалой -4	Zr—1%Nb
Al	60	<30
B	0,3	<0,4
C	150	<40—70
Ca	<10	<100
Cd	<0,2	<0,3
Cl	<5	<7
Co	<10	—
Cu	17	<10
Hf	42	300—400/≤80
Mg	<10	—
Mn	<25	<3
Si	100	46—90
Ti	<25	<30
Ni	<35	30—39
Mo	<25	<30
Na	<10	—
K	—	<30
F	—	<30
N	42	<30—40
H	10	4—7

Максимальная концентрация большинства примесей, допустимая стандартами и спецификациями, определена исследованиями их влияния на свойства циркония. Максимальная концентрация Mg, Cl, Ca, K, Na, F, P, которые относятся к следовым примесям, определена возможностями металлургических процессов получения циркония реакторной чистоты и методов их контроля. С получением дополнительных данных о влиянии таких примесей в некоторых случаях скорректированы спецификации химического состава изделий. Однако следует отметить, что такие корректировки происходят редко, и это во многом объясняется трудностями выявления особенно следовых элементов из-за их малой концентрации.

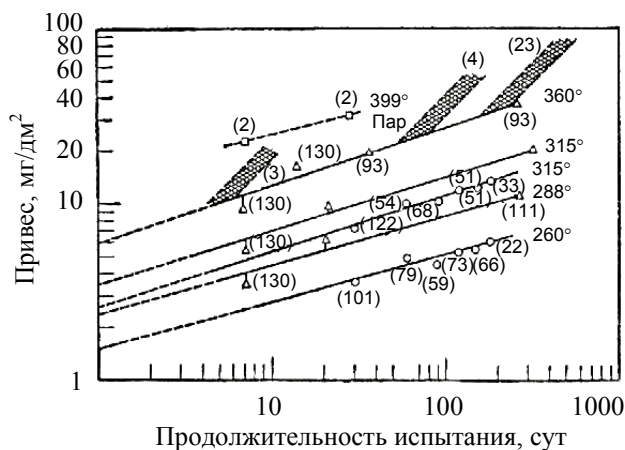
Хлор и фтор — галогены, вследствие химической активности находятся в цирконии, как и в других металлах, исключительно в виде соединений, малорастворимых в воде. Это чрезвычайно активные элементы, вступающие во взаимодействие почти со всеми веществами, в том числе с металлами (NaCl, MgCl, FeCl, CaCl, KCl

и др.). К тому же галогены очень активны по отношению к влаге и водороду [12].

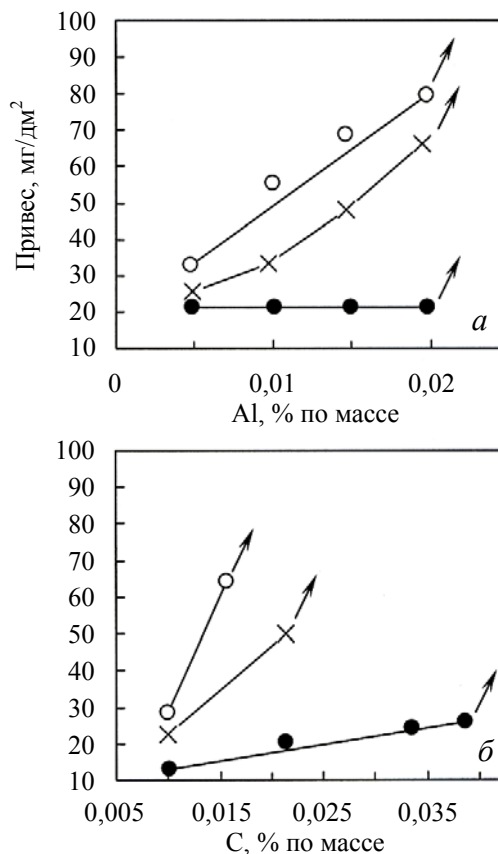
Примесные элементы и коррозионная стойкость циркония. Для нелегированного сравнительно чистого циркония характерна нестабильная коррозионная стойкость в воде и паре при высокой температуре, что обусловлено неизбежными в практике колебаниями даже в малой концентрации таких примесей, как N, C, Al, Si, Ti и др. (рис. 1) [1, 10].

Особенно заметное усиление коррозии циркония проявляется при одновременном присутствии этих элементов (рис. 2). Аналогично влиянию N, C, Al усиление коррозии наблюдается и при других комбинациях вредных примесей, присутствующих в цирконии, что указывает на необходимость обеспечения низкой концентрации особенно таких примесей, как N, Al, C, Si, Ni, что в промышленном масштабе может быть получено селекцией сырьевых материалов, определенными условиями плавки циркония и дальнейшей переработки слитков.

Примесные элементы и вязкость разрушения циркониевых материалов. Примесные элементы с малой растворимостью в цирконии, такие, как C, Si, H, в отличие от кислорода с большой растворимостью заметно снижают ударную вязкость циркониевых материалов и работу зарождения трещин (рис. 3, 4) [10]. Вязкость разрушения, в частности, труб давления из сплава Zr—2,5%Nb существенно зависит от



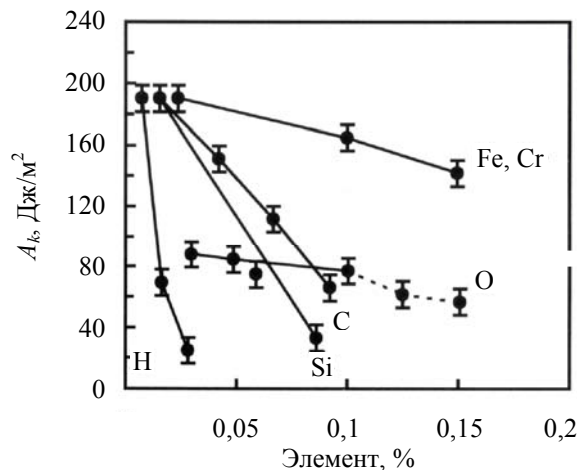
Р и с. 1. Зависимость увеличения массы иодида циркония от длительности испытания в воде при 260, 280, 315, 360, 399 °С при номинальном содержании в образцах, % по массе: Hf 0,01—0,15, Si 0,002—0,007, Fe 0,037—0,049, Al 0,0027—0,0037, Ti 0,002—0,003, Mn 0,0005, Mg 0,001, Pb 0,0025, Mo 0,001, Ni 0,0025—0,004, Cr 0,001—0,0018, Sn <0,001, W 0,01, N 0,001—0,0025, H 0,002, C 0,01, O 0,04 (цифры в скобках указывают число испытанных образцов) [1]



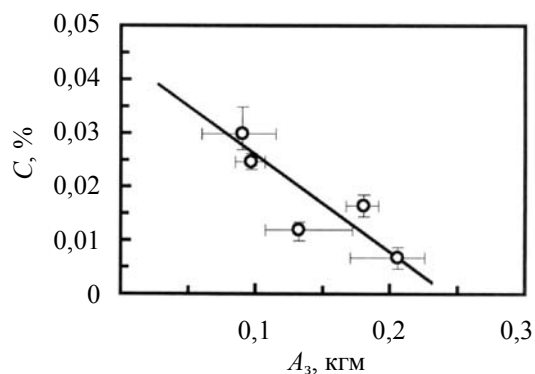
Р и с. 2. Влияние содержания азота 0,003 (●), 0,008 (×), 0,012% по массе (○) и алюминия (а), азота и углерода (б) на коррозию иодида циркония в воде при 350 °С, давлении 17 МПа, продолжительности 1000—2000 ч [10]

концентрации хлора и фосфора (рис. 5) [4]. Минимальная концентрация этих элементов, обеспечивающая максимальную вязкость труб, получена при использовании четырехкратных переплавов слитков, из которых изготовлены трубы.

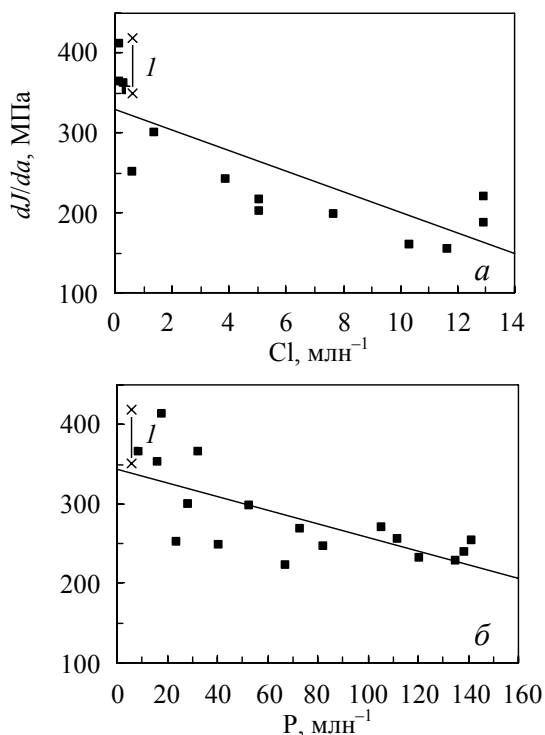
Следовые элементы могут существенно снизить сопротивление разрушению циркониевых



Р и с. 3. Влияние примесей на ударную вязкость сплава Zr—1%Nb [10]



Р и с. 4. Влияние углерода на работу зарождения трещины в сплаве Zr—2,5%Nb [10]



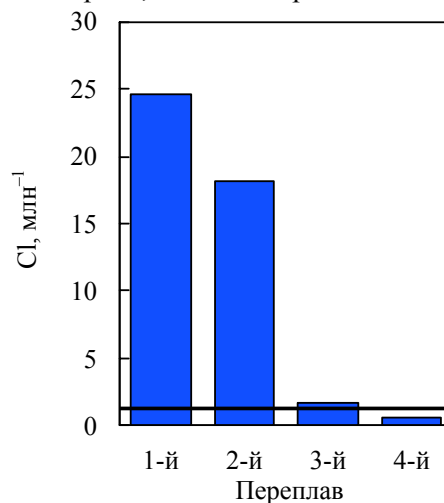
Р и с. 5. Зависимость вязкости разрушения труб давления (1 — 4-кратный переплав) из сплава Zr—2,5%Nb от концентрации хлора при содержании фтора <10 млн⁻¹ (а) и фосфора при содержании хлора <0,4 млн⁻¹ (б) [4]

изделий. Влияние водорода как гидридообразующего элемента и кислорода как упрочняющего элемента хорошо известно, но влияние С, Р, Cl и сегрегированного кислорода познано недавно (1980—1990-е годы) [4, 9]. Только недавно стала признанной сегрегация кислорода в структуре циркониевых изделий. При длительном пребывании циркониевых материалов в ($\alpha + \beta$)-фазовой области кислород диффундирует внутрь α -зерен. Упрочненные кислородом зерна могут снизить вязкость разрушения продукции. Это предотвращается оптимизацией температурно-временного цикла горячей обработки

циркониевых изделий, в частности, выдавливания [4].

Канадские специалисты большое значение в повышении сопротивления разрушению труб давления уделяют хлору [4]. По наблюдению исследователей хлор сегрегирует и выделяется в структуре в местах, называемых исследователями слабыми плоскостями и способствующих разрушению, особенно на поверхности в виде трещин. Высокая плотность трещин связывается с низкой вязкостью материала. Хлор может способствовать локализации кислорода в слитке. Многократные вакуумные переплавы, использование отобранных сырьевых продуктов и улучшение обработки поверхности изделий привели к более высокой вязкости изделий прежде всего за счет очистки от хлора при плавке (рис. 6).

Водород присутствует в исходном сырье и может добавляться на каждой последующей технологической операции при изготовлении изделий, тем самым снижая вязкость разрушения. Усовершенствованием техпроцесса, прежде всего выплавки слитка, канадским специалистам удалось снизить содержание водорода почти в 10 раз (до ≤ 3 млн⁻¹). Для достижения этой цели была использована сниженная скорость плавки на заключительных этапах, а именно осуществлен медленный перевод жидкой части в дуге и увеличена длительность удержания жидкого металла в верхней части слитка. Во время плавки при этом тщательно контролировали скорость путем фиксирования напряжения и тока печи. В результате в сплаве Zr—2,5%Nb была существенно снижена допустимая концентрация углерода и водорода, введено ограничение на содер-



Р и с. 6. Изменение концентрации хлора при исходном содержании в продукте ~ 75 млн⁻¹ от числа переплавов слитка (1 — технические требования 1,3 млн⁻¹) [4]

жание хлора и фосфора и уточнено содержание кислорода (табл. 3) [4].

Таблица 3. Максимальная концентрация примесных элементов в трубах давления, млн⁻¹

Элемент	1982 г.	1992 г.
С	270	125
Cl	Не контролировали	0,5
P	»	10
O	900—1300	1000—1300
H	25*	5*

*В готовых трубах.

Примесные элементы и потеря пластичности циркониевых материалов в условиях аварии с потерей теплоносителя. В условиях, моделирующих эту аварию, в образцах циркониевых оболочечных труб происходят структурные изменения, приводящие к усилению коррозии и заметной потере пластичности. Одной из причин, как показали исследования, является повышенное содержание следовых примесей (Si, P, Ca, K, Na, Cl, Mg, Ni) [5, 11]. Действие указанных примесей проявляется в усилении окисления и наводороживания образцов, а также в формировании определенного типа микроструктуры в процессе ($\beta \rightarrow \alpha'$)-фазового превращения, в частности, при охлаждении в паре с $\sim 1100^\circ\text{C}$.

В работах [5, 11] показано, что в результате взаимодействия с высокотемпературным паром остаточная пластичность окисленных трубчатых образцов из сплава Zr—1%Nb при испытании сжатием различалась в несколько раз. При этом наименьшую остаточную пластичность имели образцы с более высокой суммарной концентрацией следовых примесей Na, K, Ca, Mg, Ni, Si и др. (140—180 млн⁻¹). Наиболее высокую остаточную пластичность имели окисленные образцы с наименьшей сум-

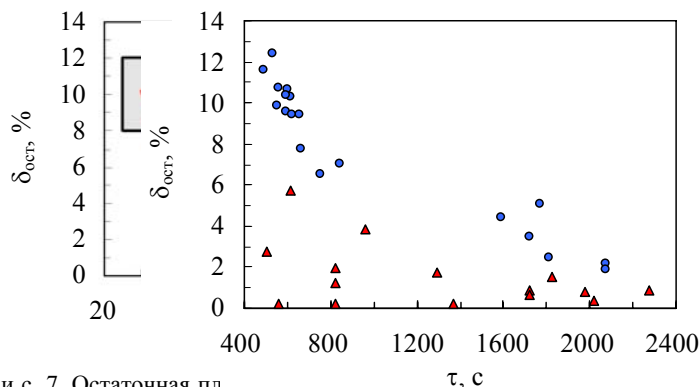


Рис. 7. Остаточная пластичность образцов сплава Zr—1%Nb после окисления в паре при 1100°C на остаточную пластичность образцов сплава Zr—1%Nb при содержании следовых примесей ~ 140 (▲), ~ 35 млн⁻¹ (●)

марной концентрацией указанных элементов ~ 25 — 45 млн⁻¹ (рис. 7). Микроструктура окисленных образцов с разной остаточной пластичностью заметно отличалась дисперсностью, а также количеством и размерами новой появившейся темной фазы, преимущественно залегающей по границам пластин распавшейся β -фазы и вблизи поверхности образцов (рис. 8). Расшифровать состав темной фазы исследователям не удалось, в отдельных случаях было зафиксировано присутствие водородосодержащей фазы с параметрами кристаллической решетки, близкими к решетке ZrH_2 .

С повышением температуры окисления в

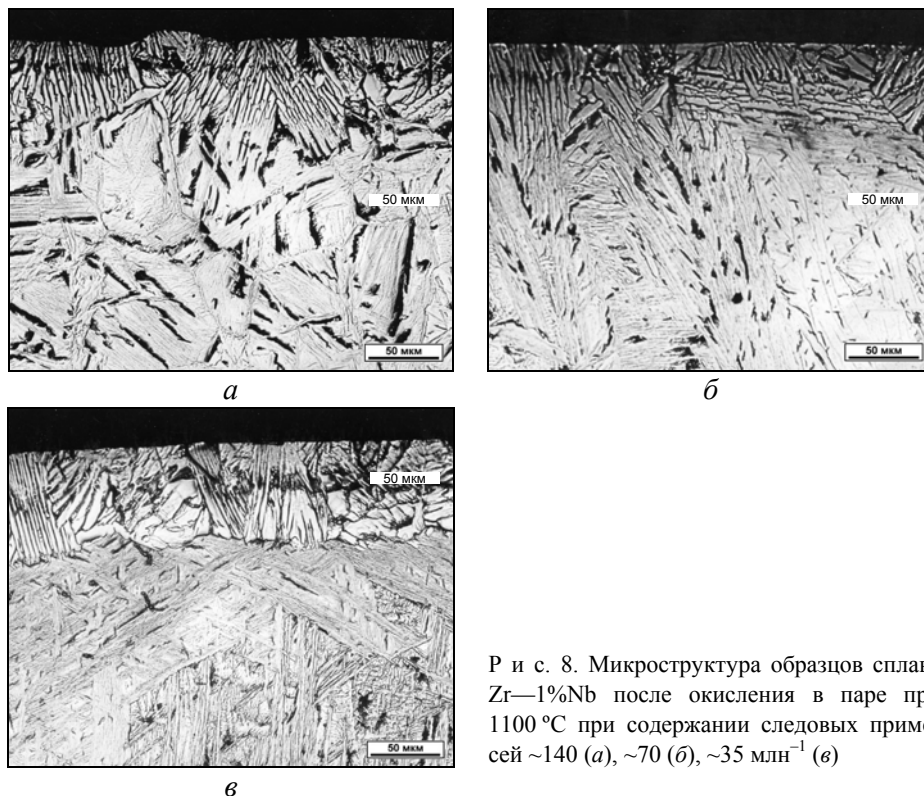


Рис. 8. Микроструктура образцов сплава Zr—1%Nb после окисления в паре при 1100°C при содержании следовых примесей ~ 140 (а), ~ 70 (б), ~ 35 млн⁻¹ (в)

паре до 1200 °С различия в микроструктуре образцов с разным суммарным содержанием примесей уменьшались. Микроструктура всех образцов характеризовалась высокой дисперсностью зерен распавшейся β -фазы и отсутствием темной структурной составляющей (рис. 9). В изломах окисленных образцов наблюдались тонкие трещины, развивающиеся перпендикулярно поверхности излома от поверхности к центру образца. В области слоя распавшейся β -фазы, прилегающего к окисленной поверхности, наблюдались трещины, ориентировка которых повторяла ориентировку пластинчатых выделений темной структурной составляющей, видимой в оптическом микроскопе. Качественно изломы исследованных окисленных образцов трех партий с различной суммарной концентрацией следовых примесей характеризовались разной вязкостью. Исследователями сделано предположение, что повышение температуры окисления до 1200 °С способствовало большей растворимости, рассредоточению примесных элементов и тем самым уменьшению их влияния.

Аналогично повышению температуры влияет и увеличение длительности окисления. С повышением длительности окисления при 1100 °С влияние примесей на остаточную пластичность ослабевает (рис. 10).

Примесные элементы и структура циркониевых материалов. Для микроструктуры циркониевых изделий характерны следующие особенности:

возможность образования микроструктуры двух типов в металле, претерпевшем ($\beta \rightarrow \alpha$)-фазовое превращение, в виде корзиночного плетения и реечных пластин;

наличие пор и строчек;

нестабильность размера и формы зерна в изделиях с α -структурой;

нестабильность размеров и плотности интерметаллидных частиц.

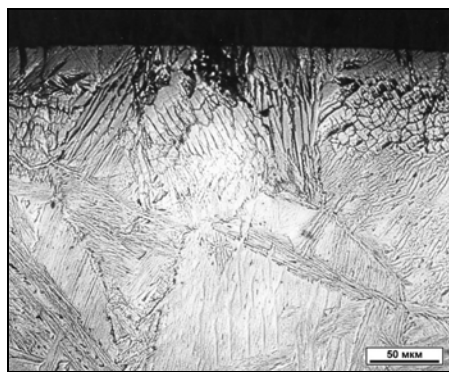
Образование обоих типов микроструктуры наблюдается в слитках и сварных соединениях, поковках и прессованных гильзах, а также в изделиях, охлажденных с температуры существования β - или ($\beta + \alpha$)-фаз [6, 7]. Выявлено, что образование той или иной микроструктуры после охлаждения из β -фазы связано с присутствием примесей С, Si и Р [7, 8].

Для формирования микроструктуры при охлаждении из β -фазы наиболее эффективны следы примесей, летучих при температуре плавления циркония и нерастворимых при более низкой температуре [6]. В соответствии с природой нерастворимых фаз, инициирующих ($\beta \rightarrow \alpha$)-фазовое превращение, изменяется влияние температуры при термообработке в β -области на микроструктуру. Так, отмечено, если кремний является основной примесью, охлаждение с 1050 °С приводит к структуре вида реечных пластин. Термообработки, проведенные при более высокой температуре, обеспечивают структуру типа корзиночного плетения. Авторы работы [6] это связывают с изменением растворимости кремния в β -фазе в зависимости от температуры.

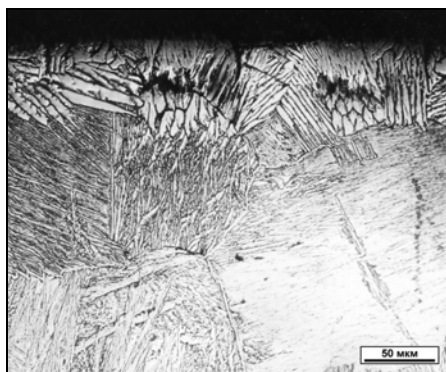
Летучие примеси с низкой растворимостью приводят к формированию различной микроструктуры при одинаковой термообработке: охлаждение с температуры 1050—1100 °С приводит к структуре корзиночного плетения, с температуры 1200 °С — к структуре типа реечных пластин (рис. 11) [6]. Вероятно, с повышением температуры в β -области из-за интенсификации процессов, в том числе растворимости примесей их влияние может ослабевать.

О действенности такого предположения говорит тот факт, что различие в значениях остаточной пластичности образцов с разной суммарной концентрацией примесей с увеличением температуры и длительности обработки в β -области снижается.

Развитие структуры типа корзиночного плетения связывают с зародышами, на которых начинается фазовое превращение во время охлаждения

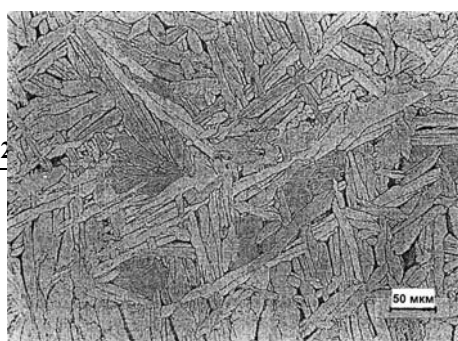


а

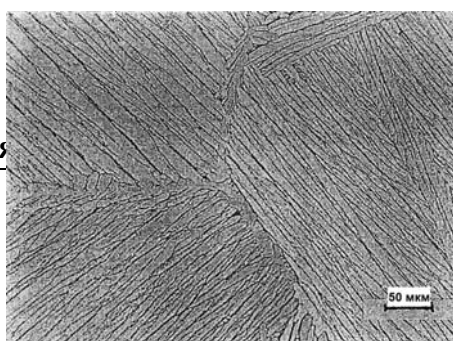


б

Р и с. 9. Микроструктура образцов сплава Zr—1%Nb после окисления в паре при 1200 °С при содержании следовых примесей ~140 (а), ~35 млн⁻¹ (б)

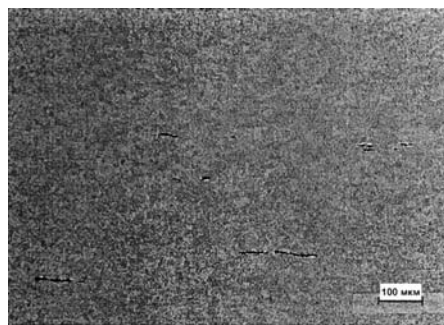


a

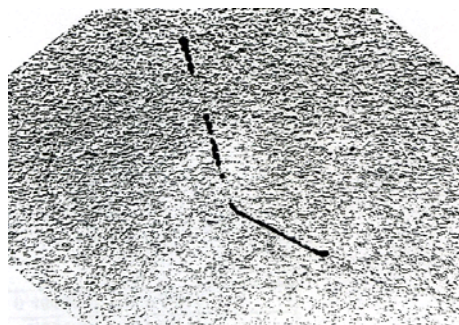


б

Р и с. 11. Микроструктура образцов циркалоя типа корзиночного плетения (*a*) и реечных пластин (*б*) после нагрева в β -области

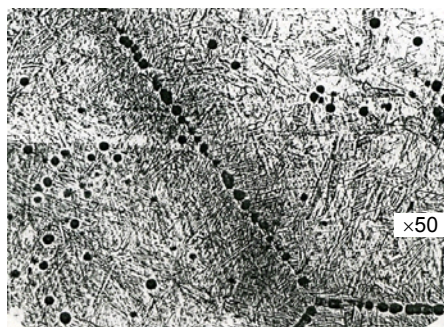


a

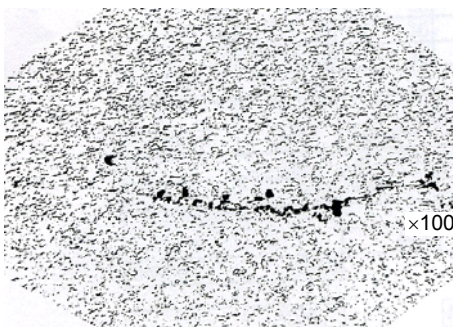


б

Р и с. 12. Газовые строчки в микроструктуре циркониевых труб и полос (*a*) и прутков (*б*)



a



б

Р и с. 13. Поры в микроструктуре верхней части слитка (периферийная часть) (*a*), прутке и полосе (*б*)

ния. С, Р, Si — элементы с низкой растворимостью — благоприятствуют такой структуре.

Хорошо известно, что в микроструктуре циркониевых изделий часто наблюдаются строчки (рис. 12). Рентгеновским и масс-спектральным анализами обнаружены в строчках летучие элементы Cl, Mg, Ca, Na и K [6]. Плотность строчек на кованных и прокатанных изделиях зависела от качества губки и параметров вакуумного переплава. Летучие элементы,

образующие нерастворимые соединения в матрице, содержались и в порах, выявленных в микроструктуре слитков. Поры могут сохраняться в обработанных слитках (рис. 13). Наличие пор в слитках объясняется тем, что летучие элементы, находящиеся в растворе жидкого металла или менее растворимые в твердом металле, во время твердения образуют пузырьки. По мере снижения температуры газообразная фаза в порах конденсируется, и при переработке слитка (ковка, прессование, прокатка) скопление таких пор формируется в виде строчек.

Единичные строчки в структуре изделий наблюдаются даже при очень низком содержании примесей ($<5 \text{ млн}^{-1} \text{ Cl}$, $<10 \text{ млн}^{-1}$ других элементов). Поэтому химический анализ изделий не может предсказать количество строчек [6].

Исследованиями показано, что Na, K, Mg, Ca благоприятствуют образованию структуры типа корзиночного плетения [5, 6, 11]. Когда эти элементы присутствуют в сплаве в виде хлоридов, они эффективнее кремния в формировании такой микроструктуры (табл. 4).

Тип микроструктуры, формирующейся при ($\beta \rightarrow \alpha'$)-превращении, в образцах с разной суммарной концентрацией следовых примесей определяет механизм и вязкость разрушения.

Закключение. Примеси в циркониевых изделиях, относящиеся к следовым, оказывают существенное влияние на их структуру и свойства. Наличие С, Si, Р, Mg, К, Са, О, Na, Cl, F, Ni, Н, особенно при комплексном их содержании, оказывает негативное влияние. Источниками примесей могут являться сырьевые материалы, используемые для выплавки слитков, прежде всего сам цирконий, и дополнительное загрязнение на отдельных стадиях технологического процесса изготовления изделий. Выявление источников указанных примесей, снижение их концентрации до минимальных значений необходимы для удовлетворения всевозрастающих требований к циркониевым изделиям.

Особое внимание в последние годы обращено на зависимость сопротивления разрушению циркониевых материалов от содержания примесей. Допустимое содержание малорастворимых в цирконии С, Si, Р, Н и образующих с ним соединения, снижающие вязкость разрушения, в последние годы в некоторых случаях было заметно снижено, что отражено в спецификациях на изделия.

Сложнее обстоит дело с летучими элементами, такими, как Mg, К, Са, Na, Cl, F, концент-

рация каждого из которых в отдельности в циркониевых материалах может быть незначительной. Это делает затруднительным их контроль при массовом производстве крупногабаритных слитков и изготовленных из них изделий, особенно если принимать во внимание, что они могут находиться и сегрегировать в определенные микроструктурные зоны.

Микроструктура циркониевых изделий чувствительна к наличию следовых примесей и равномерности их распределения. Образование микроструктуры типа корзиночных плетений в слитках и обработанных при температуре в области существования β -фазы изделиях, а также наличие пор и строчек в структуре изделий указывает на повышенное содержание в них прежде всего Mg, К, Са, Na, Cl, F и их неоднородное распределение. Примесные элементы С, Si и Р также способствуют образованию структуры этого типа.

Высокая чистота циркониевых изделий достигается селекцией партий циркония, используемого для выплавки слитков, а также условиями и режимами выплавки слитков, способствующими дальнейшей очистке от примесей,

Т а б л и ц а 4. Влияние примесных элементов на микроструктуру слитков из циркалия [6]

Элемент, млн ⁻¹	Вводили в сплав в виде	Тип микроструктуры	
		слитка	после β -закалки с 1050 °С
Не вводили	Не вводили	Реечные пластины	Реечные пластины
Na:			
14	NaOH	>>	>>
16	NaCl	Корзиночное плетение, реечные пластины	Корзиночное плетение, реечные пластины
K:			
33	KOH	Реечные пластины	Реечные пластины
21	KCl	Корзиночное плетение, реечные пластины	Корзиночное плетение, реечные пластины
Ca:			
21	CaO	Реечные пластины	Реечные пластины
18	CaCl	Корзиночное плетение, реечные пластины	Корзиночное плетение, реечные пластины
Mg:			
18	MgO	Реечные пластины	Реечные пластины
17	MgCl ₂	Корзиночное плетение, реечные пластины	Корзиночное плетение, реечные пластины
Si:			
60	Si металл	Реечные пластины	Реечные пластины
130	>>	>>	>>
C:			
100	Сажа углерода	Корзиночное плетение, реечные пластины	Корзиночное плетение, реечные пластины
200	>>	>>	>>

особенно летучих. Сегрегацию примесей на стадиях горячей обработки предотвращает сокращение длительности пребывания изделий в ($\alpha + \beta$)-области, а также их обработка в β -области. Введение указанных инноваций в изготовление и контроль изделий существенно снизили влияние примесей на свойства циркониевых материалов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ластмен Б., Керз Ф. Металлургия циркония. Пер. с англ. М.: Изд-во иностр. лит., 1959.
2. Займовский А.С., Никулина А.В. Influence of impurities and alloys elements on Zr resistance to high temperature water. — In: Intern. Conf. on Reactor use of Zr (Zr-66). Mariansky Lazny, CzSSR, 1966, p. 183—196.
3. Займовский А.С., Никулина А.В., Решетников Н.Г. Циркониевые сплавы в ядерной промышленности. М.: Энергоатомиздат, 1981.
4. Theaker I., Chonbey R., Moan G. e.a. Fabrication of Zr—2.5Nb pressure tubes to minimize the harmful effects of trace elements. — In: 12th Intern. Symp. Zr in the Nuclear Industry, ASTM STP 1245, 1994, p. 221—242.
5. Никулина А.В. Циркониевые сплавы в атомной энергетике. Металловедение и термическая обработка металлов. М.: Машиностроение, 2004.
6. Charquet D., Alheritiere E. Influence of impurities and temperature on microstructure of zircaloy-2 and zircaloy-4 after the $\beta \rightarrow \alpha$ phase transformation. — In: 7th Intern. Symp. Zr in the Nuclear Industry, ASTM STP 939, 1987, p. 284—291.
7. Ökvist G., Källström K. The effect of zirconium carbide on the $\beta \rightarrow \alpha$ transformation structure in zircaloy. — J. Nucl. Mater., 1970, v. 35, p. 316—321.
8. Meng Xian Ying, Northwood D. Zirconium phosphide precipitates in zircaloy-4. — Ibid., 1984, v. 126, p. 317—320.
9. Quach V., Northwood D. Influence of the phosphorus impurity content on the microstructure of zircaloy-4 air cooled from the high temperature β phase region. — Metallography, 1984, v. 17, p. 191—201.
10. Займовский А.С., Никулина А.В., Решетников Н.Г. Циркониевые сплавы в ядерной промышленности. Изд. 2-е. М.: Энергоатомиздат, 1994.
11. Никулина А.В., Мальгин А.Г., Голиков И.В., Базалиев Е.В. Влияние металлургических факторов на коррозию и потерю пластичности циркониевых оболочечных труб в условиях, моделирующих ЛОСА. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2006, вып. 2(67), с. 73—87.
12. Глинка Н.Л. Общая химия. М.: Химия, 1965.

Поступила в Редакцию 18.09.08

УДК 621.039.512.41

ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК КЛАДКИ УРАН-ГРАФИТОВОГО РЕАКТОРА АИ

Асновский В.Н., Ровный С.И., Глазков С.П., Федоренко Ю.В., Левунин С.Л.,
Цевелев М.П., Кожанов М.Г. (ПО «Маяк», г. Озерск Челябинской обл.),
Буланенко В.И. (ГНЦ РФ — ФЭИ им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск),
Бидуля Л.В. (РНЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Радиационное обследование графитовых кладок остановленных промышленных уран-графитовых реакторов проводится в соответствии с правилами обеспечения безопасности при выводе из эксплуатации. В статье [1] приведены результаты обследования кладок реакторов АВ-1, -2, -3. Реактор АИ отличается от реакторов типа АВ конструкцией [2] и эксплуатацией. Среди конструктивных отличий следует выделить меньшие размеры кладки и больший диаметр технологического отверстия в графитовых графита были отобраны керны из четырех ячеек, одна из которых является соседней с аварийной ячейкой. Получены экспериментальные данные об удельной активности γ - (^{60}Co , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{155}Eu , ^{154}Eu , ^{241}Am), β - (^{90}Sr + ^{90}Y , ^{14}C) и α -из-

блоках. По истории эксплуатации отметим частичную разборку кладки и замену графитовых колонн в 1956 г., что явилось необходимой мерой ликвидации последствий аварии с плавлением топлива, и безвтулочный режим работы после 1967 г. В период после разборки кладки имела место одна авария с выходом части топлива в кладку в 1974 г. Эксплуатация АИ прекращена в 1987 г.

В 2003 г. для исследования состава, уровня и распределения радиоактивного загрязнения лучающих нуклидов (^{238}Pu + ^{241}Am , ^{239}Pu + ^{240}Pu , ^{244}Cm).

В состав радиоактивных загрязнений графита входят продукты активации, деления и трансурановые радионуклиды. Последние находятся в основном в районе, близком к аварийной ячейке.