

УДК 621.039.548.533:539.182:539.124.6

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННО-ПОЗИТРОННОЙ АННИГИЛЯЦИИ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТОЛЩИНЫ ПЛАКИРУЮЩЕГО СЛОЯ В ОБОЛОЧКАХ ТВЭЛОВ ВВЭР

Булкин В.И., Филин В.М., Сотников А.С., Куликов И.А.,
Медведев А.В. (ФГУП ВНИИНМ им. А.А. Бочвара)

Наиболее серьезной причиной, лимитирующей работоспособность твэлов, является термомеханическое взаимодействие топливного диоксидного сердечника с оболочкой из циркониевого сплава, возникающее при переходных режимах эксплуатации реакторной установки [1].

Одной из наиболее эффективных мер, позволяющей существенным образом уменьшить влияние взаимодействия топлива с оболочкой на работоспособность твэлов, явилось введение барьерного слоя из чистого циркония или его сплавов на внутренней поверхности оболочки. Такой слой обеспечивает более высокую стойкость твэлов, рассчитанных на глубокое выгорание топлива и эксплуатацию в маневренном режиме [2, 3].

Основные требования для выполнения защитных функций барьерного слоя из чистого циркония — сплошность и равномерность по периметру и длине оболочки. Эти условия требуют необходимости создания надежных, чувствительных и производительных методов контроля. Сложность контроля заключается в том, что барьерный слой толщиной ~ 100 мкм располагается на внутренней поверхности трубы малого диаметра ~ 7 мм и допустимый разброс по толщине покрытия составляет ± 20 мкм. Кроме того, близость значений электропроводности чистого циркония и сплава $Zr+1\%Nb$ затрудняет применение электромагнитного (вихретокового) метода, хотя при использовании этого метода в настоящее время достигнуты определенные успехи. Контроль осложнен большим допуском на толщину стенки трубы. Ультразвуковой метод исключается ввиду равенства акустических импедансов слоя циркония и сплава $Zr+1\%Nb$, в случае хорошего металлургического сцепления граница их раздела не будет отражать импульсный акустический сигнал. Неприемлем и радиографический контроль [4].

Наряду с традиционными методами контроля толщины барьерного слоя на внутренней поверхности готовых оболочек проводятся поисковые работы нетрадиционных методов.

В настоящей работе рассмотрена возможность использования ядерно-физического метода позитронной аннигиляции для определения толщины барьерного циркониевого слоя. Толщина контролируемого слоя не превышает 100 мкм. Представлены основные принципы предлагаемого метода, его возможности, результаты исследований.

Металлографическое исследование биметаллических оболочек. Для оценки толщины плакирующего циркониевого слоя исследуемых оболочек были специально подобраны оболочки и из них вырезаны сегменты двух типоразмеров: шириной 2 и 4 мм, длиной ~ 20 мм (рис. 1). Данные металлографических исследований представлены на рис. 2, где четко виден плакирующий слой (цирконий) и основной металл (сплав $Zr+1\%Nb$).

Методика эксперимента. Позитроны от радиоактивного источника проникают в исследуемый материал на глубину до 1000 мкм, замедляются и термализуются за время ~ 1 пс. Диффузионная длина пробега термализованного позитрона ~ 100 нм. После термализации и диффузии происходит аннигиляция позитрона с электронами проводимости и ионного остова или электронами, локализованными вблизи дефектов кристаллической решетки.

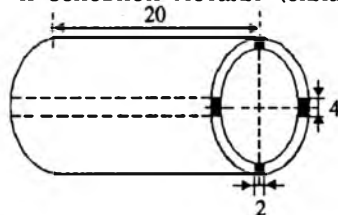
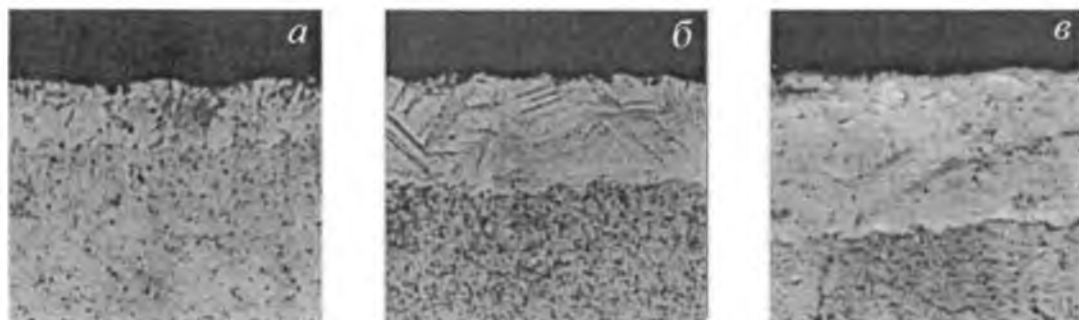


Рис. 1. Схема вырезки сегментов из цилиндрической оболочки твэла



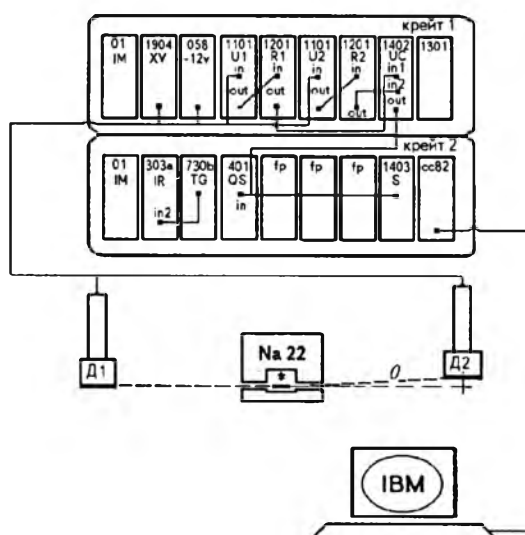
Р и с. 2. Металлографические шлифы исследованных биметаллических оболочек с циркониевым слоем толщиной 30 (а), 50 (б), 100 мкм (в)

Аннигиляция приводит к возникновению двух γ -квантов энергией 511 кэВ, разлетающихся в противоположных направлениях (на угол $\sim 2\pi$). Импульс электрона может быть зарегистрирован как малое отклонение угла от коллинеарности θ между двумя фотонами [5]. Так как импульс термализованного позитрона пренебрежимо мал по сравнению с импульсом электрона, угловое распределение фотонов представляет собой распределение электронов по импульсам в исследуемом материале, при этом $P_e(\theta) = m\theta$, где m — масса электрона; c — скорость света. Регистрируя системой с двумя позиционно-чувствительными детекторами число совпадающих γ -квантов в зависимости от их угла разлета, можно определить импульсное распределение электронов и тем самым изучить электронную структуру дефектов твердого тела.

Для исследования угловой корреляции γ -квантов собрана и успешно эксплуатируется автоматизированная установка на базе ПЭВМ, совместимой с IBM PC/AT. В состав установки входят следующие блоки и модули:

блок источника позитронов ^{22}Na активностью ~ 3 мКи со свинцовым домиком; подвижная система из двух детекторов типа БДИСЗ-05 со сцинтилляторами CsI размером $63 \times 0,35$ мм. Расположение детекторов и источника позволяет получить геометрическое разрешение $\sim 1,4$ мрад;

модули в стандарте CAMAC, установленные в два крейта (рис. 3).



Р и с. 3. Схема экспериментальной установки

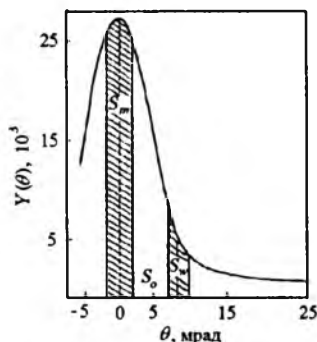
Сигналы с обоих детекторов поступают на крейт 1, в состав которого входят блоки CAMAC: м322.001 — индикатор магистрали CAMAC, м1904 — блок высоковольтного питания, м058 — преобразователь напряжения 12 В, м1101 — два спектрометрических усилителя (У1, У2), м1201 — два одноканальных анализатора (А1, А2), м1402 — схема совпадений и м1301 — интенсиметр.

Сигналы с детекторов Д1 и Д2, пройдя спектрометрические тракты У1, А1 и У2, А2, попадают на схему совпадений. С ее выхода информация передается на анализирующую подсистему, состоящую из крейта 2 и ПЭВМ. В крейте 2 расположены блоки CAMAC: м081 — индикатор магистрали CAMAC, м1403 — пересчетный блок, м401 — 16-

разрядный 4-кратный счетчик, м730В — генератор временных сигналов, м303А — регистр прерываний, СС82 — контроллер крейта.

Связь между магистралью CAMAC и ПЭВМ типа IBM PC осуществляется через контроллер крейта СС82 и пакета прикладных программ ACSA (Assembler, Fortran-77). Для обработки спектрометрической информации разработан пакет оригинальных программ ANNAIBM, TOPSEC, MODS (Fortran-77).

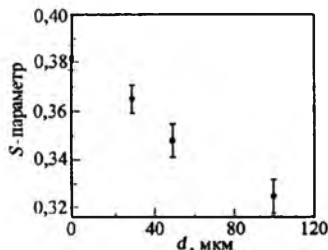
Спектр, измеряемый на описанной установке, представляет собой распределение регистрируемых совпадений в зависимости от угла разлета аннигиляционных квантов $Y(\theta)$ с шагом $d\theta \sim 3' = 0,87$ мрад (рис. 4). Спектр имеет характерную колоколообразную форму (сумма гауссиан и парабол в зависимости от структуры исследуемого вещества). Выходными данными расчетов являются параметр $S = S_m/S_0$ — отношение площади под кривой распределения при малых углах к общей площади. По изменению полученных параметров можно судить о характере аннигиляции в образце. Так, уменьшение параметра S связано с возрастанием числа позитронов, которые аннигилируют из состояния, локализованного вблизи дефекта (вакансии, кластеры вакансий, дислокации и др.). Изменение параметра в обратном направлении свидетельствует об увеличении доли позитронов, аннигилирующих в бездефектной области. По характеру изменений полученного параметра и образцов можно сделать выводы о структурных процессах в исследуемых материалах.



Р и с. 4. Распределение регистрируемых совпадений в зависимости от угла разлета аннигиляционных квантов

Для увеличения площади каждого образца и получения удовлетворительной статистики в процессе измерения вырезанные из оболочки сегменты складывали с образованием прямоугольника по площади размером 8×20 мм. Затем каждый образец устанавливали на расстоянии ~ 3 мм от источника ^{22}Na . Время набора спектра для каждого образца выбирали таким образом, чтобы статистическая погрешность в максимуме кривой не превышала $\sim 1\%$.

Результаты исследований. В настоящей работе изучены изменения параметра S спектра позитронной аннигиляции в зависимости от толщины слоя циркониевого покрытия оболочки и сплава $\text{Zr} + 1\% \text{Nb}$. Были получены значения параметра S для образцов с толщиной циркониевого покрытия $\sim 30, 50, 100$ мкм, а также для исходного образца. На рис. 5 представлена зависимость параметра S как функция толщины циркониевого покрытия. Следует отметить, что в случае использования в качестве барьерного покрытия сплава на основе циркония характер изменения параметра аннигиляции, возможно, будет таким же, как и для чистого циркония.



Р и с. 5. Зависимость параметра S от толщины циркониевого покрытия

Параметр S изменяется в зависимости от толщины слоя покрытия от максимального значения $\sim 0,38$ без покрытия до минимального $\sim 0,33$ при толщине плакирующего слоя ~ 100 мкм. Максимальный пробег позитронов источника ^{22}Na в цирконии, а также в сплаве $\text{Zr} + 1\% \text{Nb}$ (поскольку их плотность примерно одинакова) $R_{\text{max}} \sim 400$ мкм. Так как позитроны имеют непрерывное распределение по энергии от 0 до $E_{\text{max}} = 0,545$ МэВ, то их распределение по пробегу имеет колоколообразную форму с максимумом интенсивности при $R = \sim 1/3 R_{\text{max}} \sim 130\text{—}150$ мкм, причем 90% поглощения позитронов (и соответственно аннигиляция с электронами среды) происходит до глубины $\sim 0,6 R_{\text{max}} \sim 240$ мкм. Таким образом, информация о структуре металла и сплава, содержащаяся в параметрах кривой аннигиляции, является при данном спо-

собе измерения интегральной для всех слоев, заполняющих интересующие нас ~ 100 мкм. Анализируемая область может быть представлена условно как двухслойная структура. Первый слой — плакирующий слой циркония, второй — сплав $Zr+1\%Nb$. Измеряемый экспериментально параметр S отражает в себе суммарный вклад в аннигиляцию от каждого слоя. В отсутствие циркониевого покрытия аннигиляция позитронов происходит только во втором слое. Максимальное значение параметра S , возможно, объясняется повышенным содержанием дефектов в сплаве по сравнению с цирконием. Увеличение толщины плакирующего слоя уменьшает параметр S до минимального значения при ~ 100 мкм. В этом случае он отражает вклад в аннигиляцию обоих слоев.

Металлографическое исследование образцов показало, что размер зерна в сплаве ~ 5 мкм, для материала покрытия — ~ 30 мкм. Наблюдаемое различие между параметрами S сплава (исходного образца) и циркониевого покрытия (образец с толщиной плакирующего слоя ~ 100 мкм) объясняется тем, что поверхность границ зерен является местом повышенной концентрации дефектов структуры (вакансий, дислокаций), а удельная поверхность границ зерен обратно пропорциональна размеру зерна.

Возможно также послоевое определение параметра S методом позитронного глубинного сканирования дефектов. В этом случае регистрируются совпадения аннигиляционных γ -квантов, вылетающих из определенного слоя исследуемого материала, посредством коллимирования их пучка узкими щелями (50—100 мкм). Перемещая щели, можно определить распределение дефектов от поверхности материала до глубины, соответствующей максимальному пробегу позитронов. Регистрирующая аппаратура аналогична описанной. С помощью третьего детектора γ -квантов можно определить параметр S без измерения всей кривой углового распределения. С источником ^{22}Na активностью ~ 10 МКи измерение параметра S для одного участка оболочки занимает ~ 1 —3 мин. Увеличение активности источника пропорционально уменьшает время измерения. При перемещении или вращении исследуемой оболочки относительно щелей детекторов возможно автоматическое продольное и угловое измерение толщины покрытия.

Заключение. Предлагаемый метод для контроля толщины циркониевого барьерного слоя на основе электронно-позитронной аннигиляции обладает высокой чувствительностью и надежностью. Метод позволяет проводить дискретный контроль толщины слоя циркония по периметру и длине трубы с определенным шагом (100, 200 мм и т.д.). Необходимая точность измерения определяется временем набора информации в каждой точке и существенно зависит от мощности источника. Информация обрабатывается на ПЭВМ. Применение аннигиляции позитронов дополнит информацию о толщине и качестве циркониевого барьерного слоя, полученную традиционными методами. Определение толщины оболочки твэла методом позитронной аннигиляции запатентовано [7].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Решетников Ф.Г., Бибилашвили Ю.К., Медведев А.В. и др. Проблемы создания твэлов ВВЭР-1000 для работы в условиях маневренных АЭС и повышенного выгорания. — Атомная энергия, 1988, т. 64, вып. 4, с. 258—266.
2. Некрасова Г.А., Бибилашвили Ю.К., Суханов Г.И. Разработка оболочек с барьерным покрытием для твэлов водоохлаждаемых реакторов в США. — Атомная техника за рубежом, 1986, № 1, с. 3—10.
3. Rosenbaum H., Rowland T., Davies J. e.a. Large scale demonstration of barrier fuel. — In: Intern. Symp. on Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization. Stockholm, Sweden, 1986.
4. Горский В.В. Неразрушающий контроль толщины циркониевого покрытия на циркониевых оболочках. — Атомная техника за рубежом, 1990, № 7, с. 9—12.
5. Шаласв А.М., Адамсенко А.А. Радиационно-стимулированное изменение электронной структуры. М.: Атомиздат, 1977.
6. Абдурасулов З.Р., Арифов П.У., Арутюнов Н.Ю. и др. Методы позитронной диагностики и расшифровки спектров аннигиляции позитронов. Ташкент: Фан, 1985, с. 14.
7. Решение о выдаче патента на изобретение. Заявка № 99126082/28 (027775), дата поступ. заявки 14.12.1999 г.