

Встреча глав «большой семерки» в Неаполе в июле 1994 г. создала предпосылки для решения проблемы Чернобыльской АЭС в кратчайшие сроки. После визита президента Украины 14 марта 1995 г. на Чернобыльскую АЭС была в очередной раз осознана объективная реальность, что ее остановка без соответствующей компенсации для Украины невозможна, так как имеется реальная потребность в электроэнергии и отсутствуют необходимые средства для решения возникающих в связи с преждевременной остановкой станции проблем.

Возможным решением вопроса закрытия АЭС может являться только путь создания в районе Славутича необходимого количества технологических производств, способных сохранить в городе квалифицированный персонал, в том числе и для снятия АЭС с эксплуатации.

В настоящее время Чернобыльской АЭС совместно с регулирующим органом в лице Министерства охраны окружающей среды и ядерной безопасности при содействии государственного департамента энергетики США начаты организационные и подготовительные работы по созданию в Славутиче Международного научного центра, в рамках которого путем кооперации предполагается решать следующие задачи:

повышение безопасности реакторов как Чернобыльской, так и других АЭС Украины;

преобразование объекта «Укрытие» в экологически безопасную систему;

поддержка эксплуатации атомных станций Украины;

изучение опыта ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС;

снятие АЭС с эксплуатации;

решение медико-социальных проблем последствий аварии.

Создание центра позволит плодотворно сотрудничать с международным сообществом в решении проблем ядерной энергетики, изучении и переосмыслении накопленного опыта ликвидации аварии на Чернобыльской АЭС. Чернобыльская АЭС приглашает к сотрудничеству все страны, организации и предприятия, проявляющие интерес к этим проблемам.

Поступила в Редакцию 17.07.96

УДК 621.039.53

ОРГАНЫ РЕГУЛИРОВАНИЯ НА ОСНОВЕ ГАФНИЯ И ТИТАНАТА ДИСПРОЗИЯ ДЛЯ ТЕПЛОВЫХ ВОДООХЛАЖДАЕМЫХ РЕАКТОРОВ

Рисованный В.Д., Клочков Е.П., Варлашова Е.Е. (ГНЦ РФ—НИИАР)

В органах регулирования ВВЭР используются карбид бора и бористая сталь. Исследования показали, что их работа ограничена выгоранием до 45—50% ^{10}B . Это обусловлено большими радиационными повреждениями поглощающих материалов вследствие образования газообразных продуктов ядерных реакций, что приводит к сильному их набуханию и разрушению органов регулирования. Для поглощающих элементов ВВЭР-1000 такое максимальное выгорание ^{10}B в карбиде бора достигается за 3 года работы органов автоматического регулирования.

Перспективными для тепловых реакторов являются органы регулирования на основе n,γ -поглотителей. В них не образуются газообразные продукты ядерных реакций, они характеризуются более высокой радиационной стойкостью. Из n,γ -поглотителей в отечественном реакторостроении используются только оксид европия и оксид европия в металлической матрице. Экспериментально подтверждено, что время работы органов регулирования на основе поглотителей из оксида европия может превысить 20 лет. Но, несмотря на высокую радиационную стойкость и эффективность поглощения нейт-

ронов при длительной эксплуатации, материалы на основе европия не могут быть рекомендованы к широкому использованию в реакторостроении из-за высокой навешенной γ -активности и медленного ее снижения, что создает серьезные проблемы при хранении и утилизации отработавших изделий и может привести к катастрофическим последствиям в случае возникновения аварийных ситуаций. Поэтому проводятся исследования по поиску других радиационно стойких n, γ -поглотителей. К наиболее перспективным относятся титанат диспрозия и гафний.

В настоящей работе представлены результаты исследований радиационной стойкости гафния и титаната диспрозия, а также основные критерии, которым должны отвечать поглощающие материалы для обеспечения длительной работоспособности органов регулирования.

Выбор критериев. С учетом возрастающих требований к безопасности и надежности эксплуатации были приняты следующие критерии работоспособности органов регулирования:

- обеспечение запаса реактивности не менее 8—10%;
- снижение эффективности органов регулирования в конце эксплуатации не более чем на 10%;
- сохранение формы и целостности в процессе эксплуатации;
- увеличение диаметра оболочек органов регулирования не более 0,5%;
- структурно стабильный материал поглощающего сердечника, не подверженный фазовым переходам с большим объемным изменением (не более 10—15%);
- предел прочности несущих конструктивных элементов не менее 200 МПа, относительное удлинение — более 0,5%;
- скорость взаимодействия поглощающих и конструктивных материалов не более 0,001 мм/год;
- скорость коррозии в среде теплоносителя поглощающих и конструктивных материалов не менее 0,01 мм/год.

Первые четыре критерия являются основными. В случае несоблюдения одного из них работоспособность органа регулирования требует специального обоснования конкретных особенностей конструкции и характеристик реактора, в которых он используется. Следующие четыре также являются чрезвычайно важными. Они позволяют судить о состоянии материалов органов регулирования на промежуточных стадиях, а также указывают на тенденцию их дальнейшего поведения при реакторном облучении.

Предложенный набор критериев является необходимым и, как показывает многолетний опыт их использования, достаточным для надежного описания поведения органов регулирования при эксплуатации.

Материалы и используемые методики. Исследовали образцы гафния марок ГФИ-1 и ГФЭ-1. Содержание водорода, азота, кислорода и металлических примесей в гафнии марки ГФИ-1 не превышало $1 \cdot 10^{-3}$, $3 \cdot 10^{-4}$, $1 \cdot 10^{-3}$, $2 \cdot 10^{-2}$ % соответственно (без учета циркония, массовое содержание которого составляло 0,6—0,8%). В гафнии марки ГФЭ-1 содержание кислорода не превышало 0,03%. Образцы изготавливали в виде трубок диаметром 8, 12, 13, 14 мм и толщиной стенок от 1 до 2 мм, прутков диаметром 4—11 мм, пластин и фольг, а также разрывных образцов типа гагаринских.

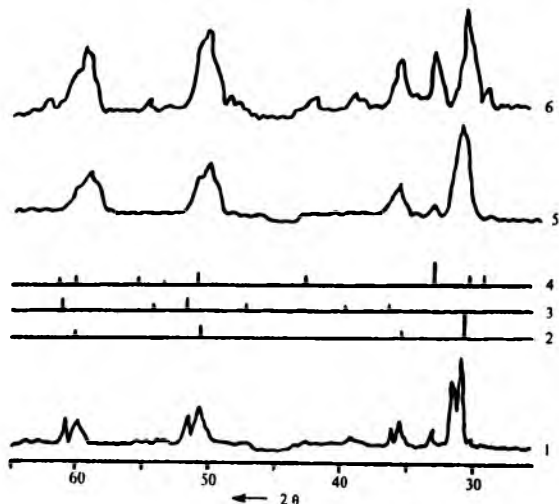
Титанат диспрозия имел различную исходную структуру: гексагональную, ромбическую, флюоритную и пироклорную. Исследовали его в виде таблеток, порошка и крупки, помещенных в оболочку из нержавеющей стали.

Образцы гафния и титаната диспрозия облучали при 290—600 °С в реакторах СМ-2, МИР, БОР-60 в контакте и без контакта с теплоносителем до максимального флюенса нейтронов $7,2 \cdot 10^{22}$ см⁻². Исследовали также титанат диспрозия органов регулирования, отработавших ресурс в ВВЭР-1000 Нововоронежской АЭС, РБМК-1000 Ленинградской АЭС, а также стержней СУЗ, проработавших 17 лет в исследовательском реакторе МИР. Послереакторные испытания включали исследования формоиз-

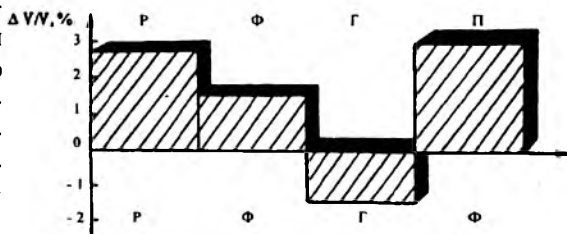
менения, размерной и структурной стабильности образцов, совместимости материалов и их коррозионной стойкости в теплоносителе — воде, механические испытания.

Титанат диспрозия. Согласно диаграмме состояний [1] при взаимодействии Dy_2O_3 и TiO_2 могут образовываться два соединения — дититанат диспрозия ($Dy_2Ti_2O_7$) со структурой пироклора и титанат диспрозия (Dy_2TiO_5), обладающий полиморфизмом — при низкой температуре он кристаллизуется в ромбической модификации, которая с повышением температуры может переходить в гексагональную ($1350^\circ C$) и флюоритную ($1680^\circ C$) с температурой плавления $1870^\circ C$. Изменяя скорость охлаждения, можно получать различную исходную структуру материала. Во всех исследованных нами материалах присутствовали как минимум три структурные составляющие.

На рис. 1 показаны рентгенограммы титаната диспрозия, облученного в составе поглощающих элементов РБМК-1000. Реакторное облучение до флюенса нейтронов $6 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ при $50\text{—}100^\circ C$ сохранило дифракционные линии всех трех фаз. Радиационные дефекты привели к уширению линий. Линии пироклорной фазы сблизились с соответствующими линиями флюорита. На передних углах ($30\text{—}35^\circ$) их нельзя разделить. Сближение линий указывает на переход фазы пироклора в высокотемпературную модификацию флюорита. Этот процесс завершается при более высокой температуре облучения. После облучения до флюенса нейтронов $5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ при $290\text{—}450^\circ C$ весь пироклор перешел во флюорит. При этом изменения объема кристаллических решеток структурных составляющих не превышают 3% (рис. 2). Причем у гексагональной решетки наблюдалось уменьшение объема до 2%. Объемные изменения кристаллических решеток компенсируются исходной пористостью порошка (более 15%) и таблеток (около 5%) титаната диспрозия и не приводят к заметному изменению объема поглощающего сердечника. Так, после 17 лет (более 110 тыс. эф. ч) эксплуатации органов регулирования МИР до максимального флюенса нейтронов $2,2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) таблетки дититаната диспрозия диаметром 22,8 мм из-за термических напряжений были разрушены, объемное изменение фазовых составляющих материала не превысило 3%, силовое воздействие на оболочку со стороны поглощающего сердечника отсутствовало — при отрезании концевых деталей сердечник свободно извлекался из оболочки, которая не изменила геометрические размеры и сохранила пластичность. При этом размеры кристаллических решеток были одинаковыми в диапазоне флюенса $(0,5\text{—}2,2) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, что свидетельствует о насыщении и сохранении достигнутых размеров и при более высоком флюенсе нейтронов.



Р и с. 1. Рентгенограммы титаната диспрозия: 1 — необлученный образец; 2, 3, 4 — теоретические стрихи диаграмм флюорита, пироклора, гексагональной фазы соответственно; 5, 6 — облучение до флюенса $6 \cdot 10^{20}$ и $1 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ соответственно



Р и с. 2. Изменение объема кристаллических решеток титаната диспрозия и фазовые переходы в нем при достижении флюенса нейтронов $2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, $300\text{—}450^\circ C$: Ф, Г, Р, П — флюоритная, гексагональная, ромбическая, пироклорная фазы соответственно

Образцы в виде оболочки с крупной титаната диспрозия облучали в СМ-2 в контакте с теплоносителем — водой при 280°C и давлении 16—20 МПа в течение 10 тыс. ч. Оболочка имела искусственный дефект в виде сквозной прорези с шириной щели 1—2 мм. Контактующая поверхность имела площадь около 20 мм^2 . Металлографические исследования после испытаний показали незначительное взаимодействие титаната диспрозия с водой.

Титанат диспрозия совместим с аустенитной сталью до $300\text{—}350^\circ\text{C}$ как минимум. Реакторные испытания в течение 28 тыс. ч следов взаимодействия не обнаружили, микротвердость материала оболочки по всей толщине не изменилась.

Результаты изучения совместимости, коррозионной и радиационной стойкости позволяют говорить о том, что на основе титаната диспрозия могут быть созданы органы регулирования с длительным ресурсом (более 15 лет) для энергетических реакторов, в частности, ВВЭР-1000. Единственной проблемой при этом остается обеспечение необходимой эффективности поглощения нейтронов, так как уже в исходном состоянии она на 15—20% ниже, чем у карбида бора, и уменьшается в процессе облучения из-за выгорания поглощающих изотопов.

Изучали также изменение изотопного состава диспрозия в титанате диспрозия, облучавшегося в составе поглощающего элемента органа регулирования РБМК-1000 Ленинградской АЭС. Наблюдалось интенсивное выгорание ^{164}Dy с накоплением изотопов гольмия. При флюенсе нейтронов $6 \cdot 10^{20}\text{ см}^{-2}$ содержание гольмия составило 15%. Быстрое выгорание поглощающих изотопов диспрозия может служить одним из основных факторов, ограничивающих длительную эксплуатацию органов регулирования на основе титаната диспрозия. Вместе с тем после 4 лет эксплуатации таких изделий в ВВЭР-1000 Нововоронежской АЭС до максимального флюенса нейтронов $1 \cdot 10^{22}\text{ см}^{-2}$ не отмечено какого-либо снижения работоспособности, в том числе и эффективности поглощения нейтронов.

Гафний. Он является одним из наиболее перспективных поглощающих материалов для органов регулирования тепловых реакторов [2—4]. По радиационным и коррозионным свойствам он не имеет аналогов среди всех известных поглощающих материалов.

Температура плавления гафния 2220°C , плотность $13,1\text{ г/см}^3$. Он обладает высокой теплопроводностью и механическими свойствами, предел прочности в 2 раза выше, чем циркония, при почти одинаковой пластической деформации. При нейтронном облучении в температурном интервале $280\text{—}350^\circ\text{C}$ происходит упрочнение материала и снижение пластичности (рис. 3). Однако во всех случаях до флюенса нейтронов $7,2 \cdot 10^{22}\text{ см}^{-2}$ ($E > 0$) относительное удлинение превышает 2%.

При нейтронном облучении образцы гафния характеризуются высокой размерной и структурной стабильностью (рис. 4). В исследованном интервале флюенса $(0,01\text{—}7,2) \cdot 10^{22}\text{ см}^{-2}$ ($E > 0$) и $(0,01\text{—}2,4) \cdot 10^{22}\text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1\text{ МэВ}$) и температуры $280\text{—}600^\circ\text{C}$ увеличение объема образцов гафния не превышало 1%.

Наблюдается анизотропное изменение размера образцов гафния, связанное с радиационным ростом, который присущ всем материалам с гексагональной плотноупакованной решеткой. При достигнутом максимальном флюенсе нейтронов $2,4 \cdot 10^{22}\text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1\text{ МэВ}$) де-

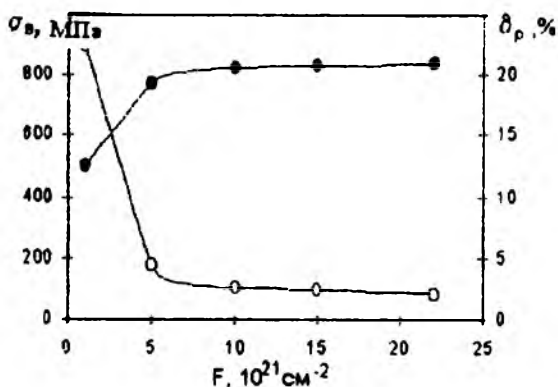
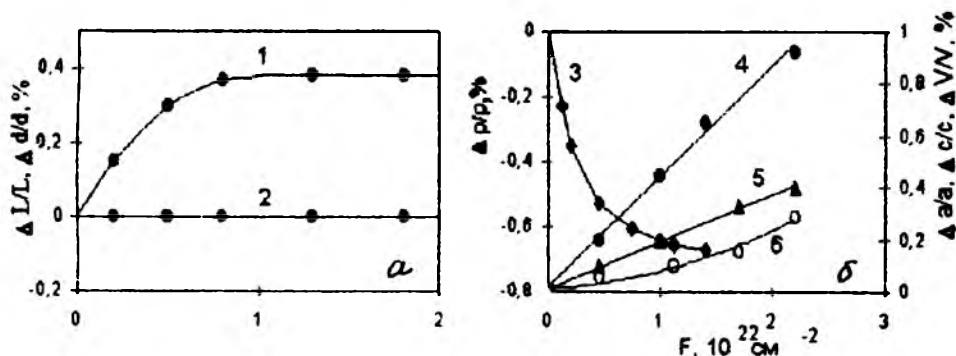


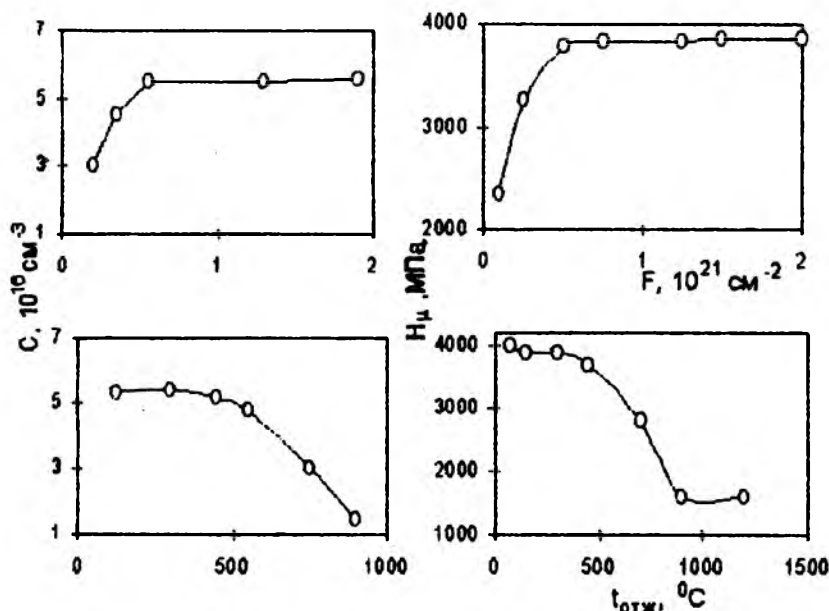
Рис. 3. Зависимость изменения кратковременных механических характеристик образцов гафния марки ГФЭ-1 от флюенса нейтронов: ● — σ_v ; ○ — δ_p



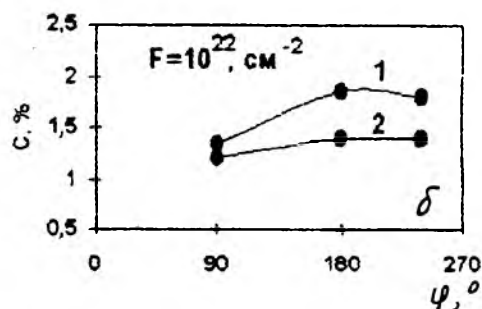
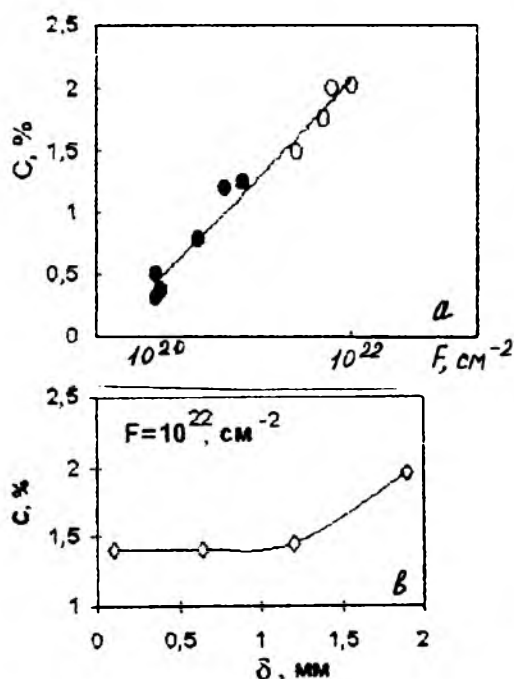
Р и с. 4. Зависимость изменения размеров — длины L и диаметра d образцов и характеристик кристаллической ячейки — плотности ρ , объема V , параметров элементарной ячейки a , c от флюенса нейтронов: 1 — $\Delta L/L$; 2 — $\Delta d/d$; 3 — $\Delta \rho/\rho$; 4 — $\Delta V/V$; 5 — $\Delta c/c$; 6 — $\Delta a/a$

формация радиационного роста не превышает 0,4%. На небольшие объемные изменения гафния указывают и результаты измерения плотности и параметров кристаллической решетки после реакторного облучения.

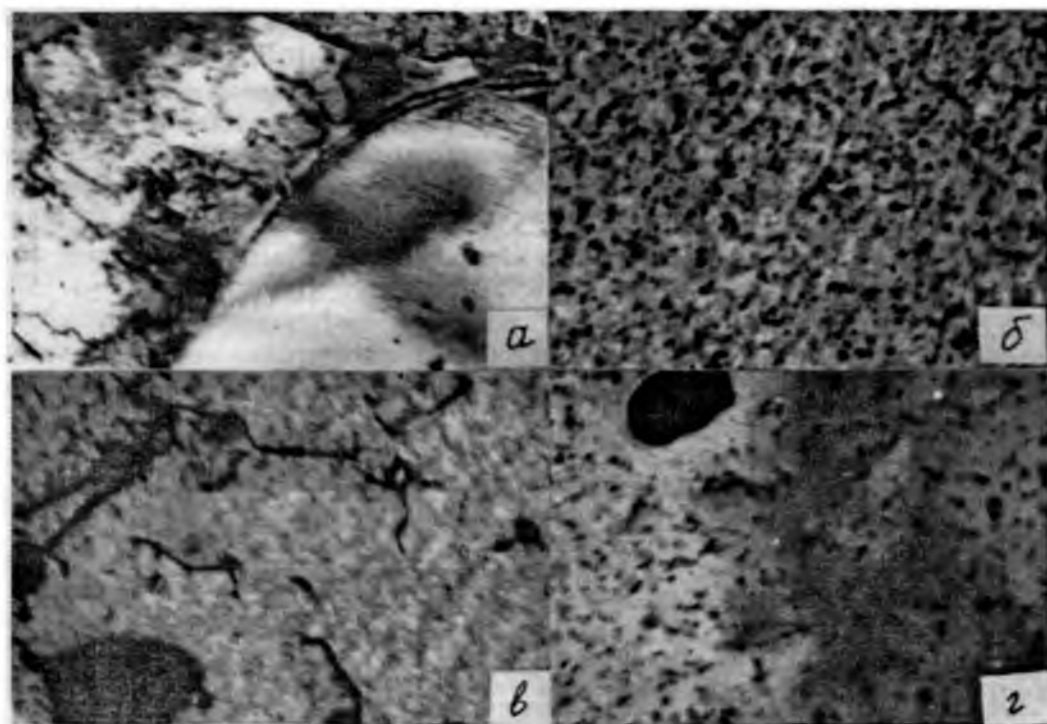
Структурные повреждения при воздействии нейтронного потока проявляются в изменении дислокационной структуры и накоплении продуктов ядерных реакций тантала и лютеция [2—5]. Образуются дислокационные петли размером 250—500 нм, при флюенсе нейтронов $(5-7) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) наблюдается их насыщение, равное плотности $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ (рис. 5). Наблюдается также хорошая корреляция между изменением микротвердости гафния и накоплением в нем дислокационных петель. При отжиге снижается концентрация петель, происходит их рост, что сопровождается уменьшением микротвердости материала. При флюенсе $7,2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0$) максимальное содержание тантала составляет около 2% (рис. 6). Тантал находится в решетке или в виде мелкодисперсных выделений размером менее 100 нм. Выделения второй фазы становятся заметны после радиационного отжига при 1000—1200 °С, когда в структуре исчезают дислокационные петли. Выделения появляются как в зерне, так и по его границам (рис. 7). Они имеют пластинчатую и сферическую форму с линейными размерами до 6000 нм.



Р и с. 5. Зависимость изменения плотности дислокационных петель в гафнии (C) и его микротвердости (H_{μ}) от флюенса нейтронов и температуры отжига



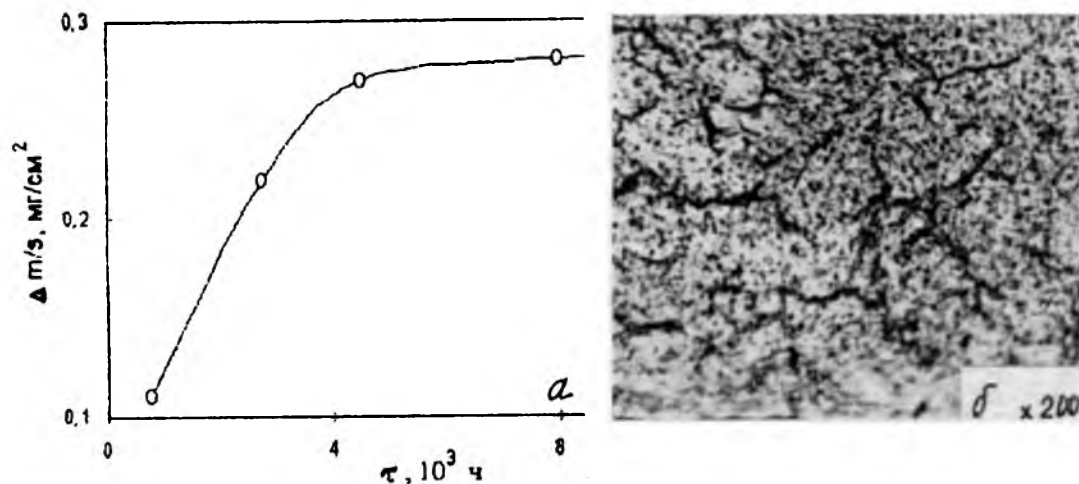
Р и с. 6. Зависимость накопления тантала (концентрации) от флюенса нейтронов (а), расположения по периметру (б) и толщине стенки труби внешним диаметром 13,5 мм: 1, 2 — наружная внутренняя поверхность соответственно; ○ — [6] ● — данные авторов настоящей статьи



Р и с. 7. Микроструктура гафния марки ГФИ-1 до облучения (а), после облучения до флюенса $2,4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ при $330-350^\circ\text{C}$ (б), плюс отжиг в течение 1 ч при 900°C (в) и 1200°C (г)

Гафний имеет высокую коррозионную стойкость в случае облучения в воде при 280°C и давлении до 20 МПа. Кинетика окисления характеризуется законом, близким к экспоненте (рис. 8,а). При облучении в течение 28 800 ч изменений в скорост

коррозии не наблюдалось. На поверхности образцов образуется оксидная пленка толщиной 3—20 мкм. В структуре появляются гидриды строчечной и глобулярной формы без определенной ориентации (рис. 8,б). Массовое содержание водорода составляет $(2-4) \cdot 10^{-2}\%$.



Р и с. 8. Зависимость привеса образцов гафния марки ГФИ-1 от времени облучения и его структура

Следует отметить, что за рубежом накоплен опыт длительной (более 15 лет) эксплуатации органов регулирования из гафния [3, 6], и в настоящее время наметилась устойчивая тенденция к все более широкому его применению.

Заключение. Гафний и титанат диспрозия являются перспективными поглощающими материалами для органов регулирования тепловых реакторов. Изделия на их основе соответствуют критериям работоспособности при длительной работе в активной зоне ВВЭР-1000. Первые опытные испытания поглощающих элементов с титанатом диспрозия на Нововоронежской АЭС позволили увеличить ресурсные характеристики органов автоматического регулирования с 2 до 4 лет. Более 17 лет стержни СУЗ с титанатом диспрозия успешно отработали в исследовательском реакторе МИР. Свойства титаната диспрозия, включая испытания макетов и образцов с титанатом диспрозия в петлях СМ-2, МИР, БОР-60, непротиворечивы, что позволяет утверждать возможность достижения ресурса поглощающих элементов в ВВЭР-1000 как минимум до 15 лет.

По сравнению с титанатом диспрозия гафний имеет дополнительные эксплуатационные преимущества — более высокую радиационную и коррозионную стойкость, возможность одновременного использования в качестве поглощающего и конструкционного материала, более высокую исходную эффективность поглощения нейтронов, меньшую скорость выгорания поглощающих изотопов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Queyroux F. Sur la formation de composés nouveaux dans les systèmes oxyde de titane-oxydes de terres rares. C. R. Acad. Sc. Paris, t. 259 (24 août 1964), Group 8, p. 1527—1529.
2. Рисованный В.Д., Ключков Е.П., Пономаренко В.Б. Гафний в ядерной технике. НИИАР, 1993. 143 с.
3. Ключков Е.П., Рисованный В.Д., Четчикова З.И. Использование гафния в органах регулирования атомных реакторов. Обзор. М., ЦНИИатоминформ, 1985.
4. Ключков Е.П., Рисованный В.Д. Гафний в атомной технике. — Атомная техника за рубежом, 1987, № 10, с. 12—16.

5. Рисованый В.Д. и др. Структурные повреждения металлического гафния при реакторном облучении. — Труды Межд. конф. по реакторному материаловедению (Алушта, 22—25 мая 1990 г.). Харьков, 1991, т. 8, с. 118—124.
6. Keller W., Shellenberg J., Hollen D. e.a. Development of hafnium and comparison with other pressurized water reactor control rod materials. — Nucl. Technol., 1982, v. 59, № 3, p. 476—482.

Поступила в Редакцию 23.04.96

УДК 621.039.52.034.6

ЯДЕРНЫЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ УСТАНОВКИ С ТЕПЛОНОСИТЕЛЕМ СВИНЕЦ—ВИСМУТ

*Громов Б.Ф., Орлов Ю.И., Тошинский Г.И., Чекунов В.В.
(ГНЦ РФ—ФЭИ им. А.И. Лейпунского)*

Опыт применения теплоносителя свинец—висмут. В СССР для атомных подводных лодок наряду с реакторами водо-водяного типа разрабатывались и использовались реакторы с жидкометаллическим теплоносителем [1]. В качестве жидкометаллического теплоносителя был выбран эвтектический сплав свинец—висмут. Целесообразность использования такого сплава (Pb 44%, Bi 56%) обусловлена его физико-химическими и термодинамическими свойствами, позволяющими в наиболее полной степени удовлетворить требования безопасности.

Высокая точка кипения 1670 °С позволяет иметь в первом контуре низкое давление, что упрощает конструкцию и повышает ее надежность, уменьшить толщину стенок корпуса реактора и не вводить ограничения на скорость изменения температуры по условиям термоциклической прочности, что обеспечивает работу реакторной установки в маневренном режиме.

Слабая химическая активность теплоносителя позволяет реализовать двухконтурную схему отвода тепла. Аварийные процессы, связанные с потерей герметичности трубопроводов первого контура и межконтурными течами парогенератора, происходят без выделения водорода. Температура плавления теплоносителя ~ 125 °С, поэтому поддержание его в жидком состоянии в различных режимах эксплуатации реакторной установки обеспечивается несложными техническими решениями. В процессе эксплуатации теплоноситель не расходуется и может быть использован повторно. При ремонтных работах и перегрузке реактора не требуется дезактивировать первый контур.

Спецификой теплоносителя является образование в нем α -активного ^{210}Po с периодом полураспада ~ 138 сут. Основным фактором его радиационной опасности является образование радиоактивных аэрозолей и паровой фазы полония при контакте горячего теплоносителя с воздухом, что возможно в условиях аварийной разгерметизации первого контура и пролива сплава. Как показал опыт эксплуатации, выход аэрозолей полония и радиоактивность воздуха быстро уменьшаются после снижения температуры и затвердевания пролитого сплава, что ограничивает площадь радиоактивного загрязнения и облегчает его удаление в виде твердых радиоактивных отходов.

Низкая концентрация полония в сплаве (атомная доля $10^{-8}\%$) и образование термодинамически стойкого химического соединения со свинцом, снижающее упругость пара полония еще в 1000 раз, привели к тому, что за многолетний период эксплуатации ЯЭУ с теплоносителем свинец—висмут не наблюдалось случаев переоблучения персонала. Это положительный практический результат совпадает с выводами зарубежных специалистов [2].

Среди основных проблем, которые были решены в ходе разработки, освоения и эксплуатации установок этого типа, необходимо выделить технологию теплоносителя — разработку комплекса систем и устройств, обеспечивающих контроль и поддер-